



**UNIVERSITÉ D'ORLÉANS**



**ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace  
LPC2E

**THÈSE** présentée par :  
**Verónica SALAZAR**

soutenue le: **13 décembre 2010**

pour obtenir le grade de: **Docteur de l'Université d'Orléans**  
Discipline: Physico-Chimie de l'Atmosphère

**Étude des propriétés physiques des aérosols  
de la moyenne et haute atmosphère à partir  
d'une nouvelle analyse des observations de  
GOMOS-ENVISAT pour la période 2002-2006**

**JURY :**

**M. Gilles POULET**

**Mme. Colette BROGNIEZ**

**M. Alain HAUCHECORNE**

**M. Slimane BEKKI**

**Mme. Christine BINGEN**

**M. Paolo LAJ**

**M. Jean-Baptiste RENARD**

Professeur, Université d'Orléans

Professeur, Université de Lille I

Directeur de recherche, LATMOS

Directeur de recherche, LATMOS

Chercheur, IASB, Belgique

Directeur de recherche, LGGE

Directeur de recherche, LPC2E

Président du jury

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examinatrice

Examineur

Directeur de thèse



*A Ignacio, Natalia y David*





# Remerciements

*Je remercie Pierre-Louis Blelly, directeur du LPCE à mon arrivée, de m'avoir accueillie au sein du laboratoire, et Michel Tagger, directeur du LPC2E à mon départ, que j'ai eu la chance de mieux connaître.*

*Merci aux membres du jury: Paolo, pour avoir accepté d'examiner ce travail; Christine et Slimane, pour l'intérêt qu'ils ont porté à ma thèse, et pour les discussions qui ont enrichi mon esprit scientifique. Alain et Colette méritent une reconnaissance spéciale, et Gilles une affection particulière.*

*Je remercie sincèrement Jean-Baptiste, car en travaillant à ses côtés j'ai énormément appris pendant ces trois années. Je lui suis reconnaissante de l'encadrement dont j'ai bénéficié et de l'expérience inoubliable qui a été celle de l'accompagner lors d'un vol à bord de l'A300 ZERO-G.*

*Je dois beaucoup à Christophe, grâce à qui j'ai découvert l'enseignement dans les meilleures conditions. Je le remercie pour ses conseils, et pour son engagement en tant que tuteur pédagogique. Merci également à Charles de Izarra, directeur de l'antenne universitaire de Bourges, et à Luc Morin-Allory, ancien directeur de l'École Doctorale et actuel directeur du CIES.*

*Merci à Julien, Antoine et Franck pour les services rendus et pour leur disponibilité; à Marco pour ses nombreux coups de main et dépannages; à Michèle, sur qui j'ai pu compter (y compris weekends et jours fériés) pour consulter articles et ouvrages en urgence... Merci à Jean-Louis, Aurélie et Xavier de ne pas avoir lésiné en bon conseils, à Jean Yves pour son aide informatique et pour les bons moments passés au LPCE (Le Petit Club d'Échecs), à Mirvatte pour avoir rendu le quotidien dans notre bureau aussi sympathique... !*

*Bien plus nombreuses que les personnes citées me sont chères, mais leur amitié se situe au-delà du remerciement; je pense à tous ceux qui, au LPC2E et ailleurs, ont fait partie de ma vie pendant ces années. Mes pensées plus affectueuses s'adressent à mes parents, à mon frère et à Rémi.*



---

# Table des matières

<b>Acronymes</b>	<b>11</b>
<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>Chapitre 1. L'atmosphère terrestre et les aérosols</b>	<b>17</b>
1.1 Bilan radiatif .....	18
1.2 Structure et composition de l'atmosphère .....	19
1.3 Dynamique atmosphérique.....	21
1.3.1 Circulation générale.....	21
1.3.2 Éléments de la dynamique stratosphérique.....	22
1.4 Chimie stratosphérique.....	25
1.4.1 Chimie de l'ozone.....	25
1.5 Aérosols: généralités .....	28
1.5.1 Définition et classification.....	28
1.5.2 Distribution en taille .....	30
1.5.3 Effets climatiques des aérosols .....	31
1.6 Aérosols stratosphériques.....	33
1.6.1 Instruments et techniques de mesure .....	33
1.6.2 Nuages stratosphériques polaires.....	37
1.6.3 Aérosols liquides sulfatés .....	38
1.6.4 Aérosols volcaniques .....	39
1.6.5 Aérosols carbonés.....	45
1.6.6 Poussières interplanétaires.....	47
1.6.7 Distribution des aérosols stratosphériques.....	48

<b>Chapitre 2. L'instrument GOMOS</b>	<b>51</b>
2.1 Description générale de l'instrument GOMOS .....	52
2.2 Optique atmosphérique.....	53
2.2.1 Spectroscopie d'absorption .....	53
2.2.2 Contribution de diffusion .....	54
2.2.3 Extinction.....	55
2.3 La technique d'occultation stellaire.....	56
2.3.1 Choix des sources lumineuses.....	57
2.3.2 Couverture géographique des observations .....	58
2.3.3 Résolution verticale et précision .....	59
2.4 Produits scientifiques.....	61
2.4.1 Données de niveau 1b .....	61
2.4.2 Données de niveau 2 .....	61
 <b>Chapitre 3. L'algorithme d'inversion</b>	 <b>65</b>
3.1 Description de la méthode d'analyse.....	66
3.1.1 Domaine spectral.....	67
3.1.2 Inversion spectrale .....	68
3.1.3 Inversion spatiale (ou verticale).....	77
3.2 Critères de sélection.....	81
3.2.1 Critère sur l'écart type.....	82
3.2.2 Critère sur l'altitude minimale de l'ozone .....	83
3.2.3 Critère additionnel.....	83
3.3 Validation de la méthode d'analyse.....	85
3.3.1 Comparaison directe .....	86
3.3.2 Comparaison à d'autres produits.....	93
 <b>Chapitre 4. Climatologie 2002-2006 et analyse</b>	 <b>103</b>
4.1 Couverture temporelle et géographique.....	104
4.2 Profils d'extinction .....	109
4.2.1 Couche de Junge .....	109
4.2.2 Nuages stratosphériques polaires .....	111

## Table des matières

---

4.2.3	Moyennes journalières .....	112
4.3	Répartition spatiale des aérosols .....	115
4.4	Nature des aérosols.....	136
4.4.1	Particules météoritiques.....	140
4.4.2	Aérosols carbonés.....	141
4.4.3	Comparaison à des mesures in situ .....	141
4.5	Interprétation dynamique.....	143
4.5.1	Hivers polaires .....	147
4.6	Événements particuliers .....	148
4.6.1	Août-septembre 2003.....	148
4.6.2	Hiver arctique 2003-2004 .....	151
4.6.3	Hiver arctique 2005-2006 .....	152
<b>Conclusions générales et perspectives</b>		<b>153</b>
<b>Annexe</b>		<b>157</b>
<b>Liste des Tableaux</b>		<b>169</b>
<b>Liste des Figures</b>		<b>171</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>177</b>



---

## Acronymes

ACE	: <i>Atmospheric Chemistry Experiment</i>
AMON	: Absorption par les Minoritaires Ozone et NO <sub>x</sub>
CCD	: <i>Charge-Couple Device</i>
CCNUCC	: Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques
CI	: <i>Color Index</i>
CME	: <i>Coronal Mass Ejection</i>
DMS	: <i>DiMethyl Sulfide</i> (CH <sub>3</sub> -S-CH <sub>3</sub> )
DOAS	: <i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i>
ECMWF	: <i>European Center for Medium-Range Weather Forecasts</i>
ENVISAT	: <i>ENVironnemental SATellite</i>
ESA	: <i>European Space Agency</i>
FFT	: <i>Fast Fourier Transform</i>
GES	: Gaz à Effet de Serre
GIEC	: Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
GOMOS	: <i>Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars</i>
IASB	: Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique
IDL	: <i>Interactive Data Language</i>
IPCC	: <i>Intergovernmental Panel on Climate Change</i>

IR	: Infra-Rouge
LATMOS	: Laboratoire ATmosphère, Milieux, Observations Spatiales
LPC2E	: Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace
LOA	: Laboratoire d'Optique Atmosphérique
MODIS	: <i>Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer</i>
MSIS90	: <i>Mass-Spectrometer-Incoherent-Scatter Model (version 90)</i>
NDACC	: <i>Network for the Detection of Atmospheric Composition Change</i>
NO <sub>x</sub>	: Oxydes d'azote: NO, NO <sub>2</sub>
NO <sub>y</sub>	: Composés oxy-azotés: NO <sub>x</sub> , NO <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , ClONO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub>
OCS	: Oxysulfure de carbone ou sulfure de carbonyle (O=C=S)
PSC	: <i>Polar Stratospheric Cloud</i>
QBO	: <i>Quasi Biennial Oscillation</i>
SAGE	: <i>Stratospheric Aerosol and Gas Experiment</i>
SALOMON	: Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et NO <sub>x</sub>
SPARC	: <i>Stratospheric Processes And their Role in Climate</i>
SPE	: <i>Solar Proton Event</i>
SSW	: <i>Sudden Stratospheric Warming</i>
STAC	: <i>Stratospheric and Tropospheric Aerosol Counter</i>
SVC	: <i>Subvisible Cirrus Cloud</i>
TOMS	: <i>Total Ozone Mapping Spectrometer</i>
UV	: Ultra-Violet



---

# Introduction

Les notions de pollution, déforestation, problèmes environnementaux, biodiversité, qualité de l'air, ou encore destruction de la couche d'ozone et réchauffement climatique sont relativement récentes. C'est en 1972, lors de la conférence des Nations Unies sur l'Environnement Humain à Stockholm, que les préoccupations écologiques sont abordées pour la première fois au rang des préoccupations internationales. De cette rencontre sort la création du Programme des Nations Unies pour l'Environnement (PNUE), et de réunions décennales que l'on nomma Sommets de la Terre, destinés à faire le point sur l'état de notre planète et à définir les moyens de stimuler le développement durable au niveau mondial.

Le troisième Sommet de la Terre, la Conférence de Rio en 1992, est marqué par l'adoption d'un texte fondateur de 27 principes, intitulé: « Déclaration de Rio sur l'environnement et le développement », et par la création de l'UNFCC (*United Nations Framework on Climate Change*), en français CCNUCC (Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques), un traité international signé par plus de 150 pays, qui reconnaît les possibilités de préjudice du réchauffement climatique, et qui adopte alors l'objectif d'une stabilisation des émissions de gaz à effet de serre. L'IPCC (*International Panel on Climate Change*), en français GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat) a comme activité principale la publication de rapports pertinents à la mise en œuvre des objectifs de l'UNFCC.

D'après leur dernier rapport (IPCC, 2007), les activités humaines menées depuis 1750 ont eu globalement un effet de réchauffement net, avec un forçage radiatif de  $1,6 [0,6 \text{ à } 2,4] \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$  (Figure 1). Le forçage cumulé résultant de l'augmentation des concentrations des principaux gaz à effet de serre à longue durée de vie,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{N}_2\text{O}$ , est de  $2,3 [2,1 \text{ à } 2,5] \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ , dont le  $\text{CO}_2$  contribue à hauteur d'environ 70%; cet effet de serre additionnel est à l'origine du réchauffement climatique et ne représente qu'une faible perturbation de l'effet de serre naturel (estimé à  $155 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ), mais les conséquences écologiques, sociales et économiques sont lourdes, et aujourd'hui sans précédent.

Certaines composantes présentées dans la Figure ci-dessous induisent un forçage négatif; les effets refroidissants les plus notables sont dus aux contributions des aérosols, auxquels est attribué un forçage radiatif de  $-0,5 \pm 0,4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  pour les sulfates, le carbone organique, le carbone noir, les nitrates et les poussières, et de  $-0,7 [-1,8 \text{ à } -0,3] \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  pour le forçage indirect dû à l'albédo des nuages.

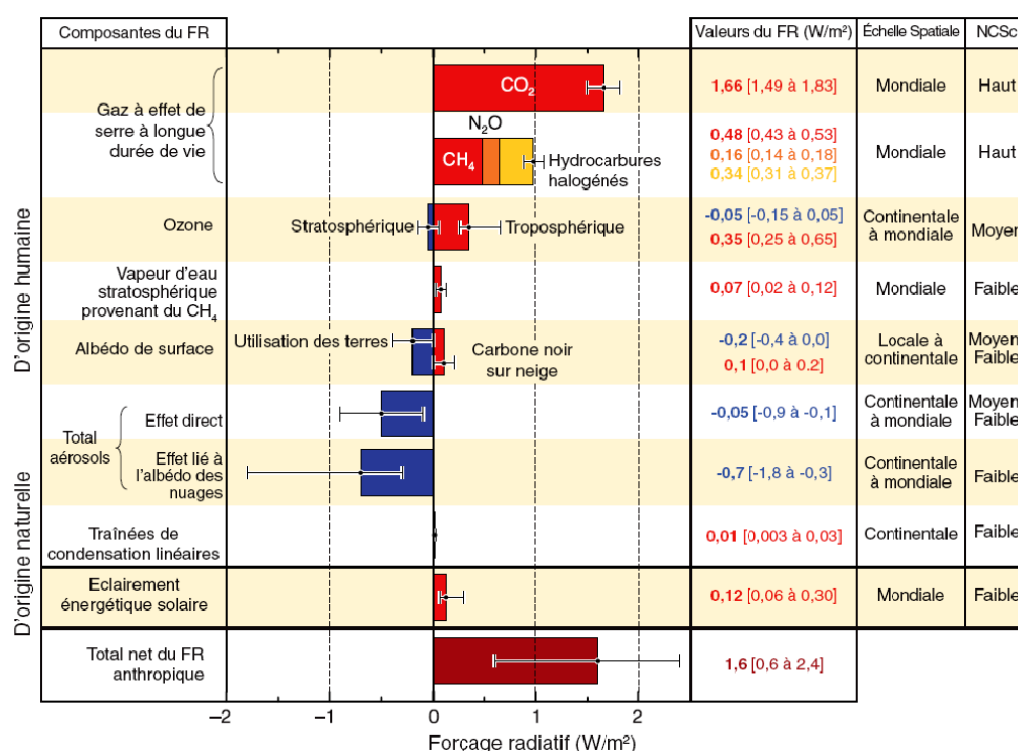


Figure 1. Composantes du forçage radiatif d'après le quatrième rapport d'évaluation du GIEC (2007). Les barres d'incertitude représentent les gammes des valeurs mesurées, tandis que la valeur utilisée pour l'histogramme correspond à la valeur communément admise.

Alors que le forçage radiatif induit par les gaz à longue durée de vie est connu avec bonne précision, car il repose sur l'évolution des concentrations mesurées, l'incertitude est ample pour les estimations concernant les aérosols. Ceci reflète la complexité des mécanismes d'influence des particules sur le climat, mais aussi le faible niveau de connaissance quant à la distribution géographique et temporelle des aérosols dans l'atmosphère. Dans le cas des particules stratosphériques, l'intérêt de leur étude repose également sur l'influence qu'ils exercent sur le cycle de destruction de l'ozone stratosphérique.

Dans la période peu active -d'un point de vue d'éruptions volcaniques majeures- que l'on vit actuellement, les aérosols stratosphériques (hormis ceux qui forment la couche de Junge, et les nuages stratosphériques polaires) sont souvent considérés comme étant presque inexistants dans la moyenne et haute stratosphère. Leur présence a pourtant été prouvée par nombreux travaux, mais leur analyse optique est compliquée et problématique du fait que l'aérosol ne désigne pas un type d'espèce, mais une population de particules de diverses natures aux propriétés physiques variées.

Le LPC2E participe depuis une quinzaine d'années à l'étude de ces aérosols. Des mesures de leurs concentrations et de la dépendance spectrale de leur coefficient d'extinction sont effectuées régulièrement par des instruments embarqués sous ballons stratosphériques. Après le lancement en 2002 du satellite européen ENVISAT, le LPC2E a fortement participé à la validation des mesures chimiques de différents instruments. Un effort important a notamment été conduit sur la validation de l'instrument GOMOS, aussi bien pour les espèces chimiques que pour les particules stratosphériques. Depuis 2008, le LPC2E a intensifié le nombre de mesures in situ de la concentration d'aérosols stratosphériques dans le cadre de programmes nationaux (STRAPOLETE, AEROWAV), afin d'étudier leur nature et de mieux documenter leur variabilité spatio-temporelle. Néanmoins, ces mesures très ponctuelles nécessitent d'être complétées par une climatologie globale, qui ne peut être réalisée que par des instruments à bord de satellites. Ce travail de thèse s'inscrit dans cette stratégie; il consiste à analyser et interpréter les mesures de GOMOS à partir d'un algorithme issu de celui utilisé pour les mesures d'extinction par instruments sous ballon, et optimisé pour la détection des aérosols dans la moyenne et haute stratosphère.

Ce mémoire se compose de 5 chapitres. Le premier vise à présenter au lecteur les éléments nécessaires à la compréhension du travail, par une introduction générale à la composition de l'atmosphère, la stratosphère y étant plus détaillée; les méthodes de mesure des aérosols et l'état actuel des connaissances en ce qui concerne les particules stratosphériques sont traités. Dans le deuxième chapitre sont décrites la technique d'occultation stellaire et les particularités de l'instrument GOMOS. Le troisième chapitre aborde l'algorithme d'inversion utilisé ainsi que la méthode employée dans l'analyse, validation et tri de données. Dans le chapitre 4, une climatologie de l'extinction est présentée pour la période 2002-2006, et les variations du contenu en aérosols dans différentes régions de la stratosphère sont étudiées. Étant donné que la climatologie inclut une couverture globale, plusieurs situations dynamiques et météorologiques sont présentes. Les conclusions générales et perspectives sont recueillies dans la dernière partie de ce mémoire.



---

# Chapitre 1

## L'atmosphère terrestre et les aérosols

Depuis les années 1950, des avancées énormes ont contribué à la compréhension de la moyenne atmosphère (10 à 90 km). La plupart des phénomènes peuvent aujourd'hui être modélisés avec un degré de fiabilité raisonnable. Cependant, les aérosols, utilisés dans l'étude de la chimie et de la dynamique atmosphérique, et très étudiés après de fortes éruptions volcaniques, demeurent des éléments dont l'incertitude des estimations est ample. En raison de la grande variabilité de leurs propriétés physiques et chimiques, leur étude nécessite un grand nombre d'observations à toutes les échelles. L'observation depuis l'espace est la seule méthode qui permet une vision de l'atmosphère à l'échelle de la planète.

Au cours de ce chapitre sont présentés les éléments principaux décrivant la structure de l'atmosphère, ainsi que la chimie et la dynamique se déroulant dans la stratosphère. Les aérosols y sont également introduits, avec une attention spéciale portée aux particules stratosphériques: instrumentation, état des lieux des connaissances actuelles et principaux travaux réalisés jusqu'à ce jour. Mais tout d'abord, une description des apports énergétiques est nécessaire dans l'introduction du bilan énergétique.

## 1.1 Bilan radiatif

Le soleil, éloigné de la Terre d'environ 150 millions de kilomètres, constitue la seule source externe d'énergie dont dépend notre climat. Les interactions entre son rayonnement et l'atmosphère, la biosphère et les océans sont complexes, ce qui rend les estimations à propos du réchauffement climatique difficiles à réaliser. Le bilan énergétique, exprimé par sa valeur moyenne sur le globe et sur une année en unité d'énergie par seconde et par mètre carré ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ ), permet de donner une estimation chiffrée de la différence entre les énergies totales d'entrée et de sortie dans le système climatique. Il est à l'équilibre lorsque la quantité de rayonnement solaire incident est égale à la somme du rayonnement solaire réfléchi (albédo) et du rayonnement infrarouge thermique sortant (tellurique). Toute perturbation de cet équilibre radiatif global, qu'elle soit d'origine naturelle ou anthropique, est appelée forçage radiatif. Par convention, le forçage radiatif est positif s'il correspond à un réchauffement du système, et négatif dans le cas contraire.

Le flux solaire au sommet de l'atmosphère est d'environ  $1370 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ; la quantité moyennée sur toute la planète est un quart de cette valeur ( $342 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ , Figure 2). Une partie de l'énergie solaire reçue (environ 30%) constitue l'albédo: elle est directement réfléchie vers l'espace par les molécules, nuages et aérosols de l'atmosphère ( $77 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ) et par la surface terrestre ( $30 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ). Le reste du rayonnement (environ 70%) est absorbé par l'atmosphère ( $67 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ) et par les océans et continents à la surface ( $168 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ ).

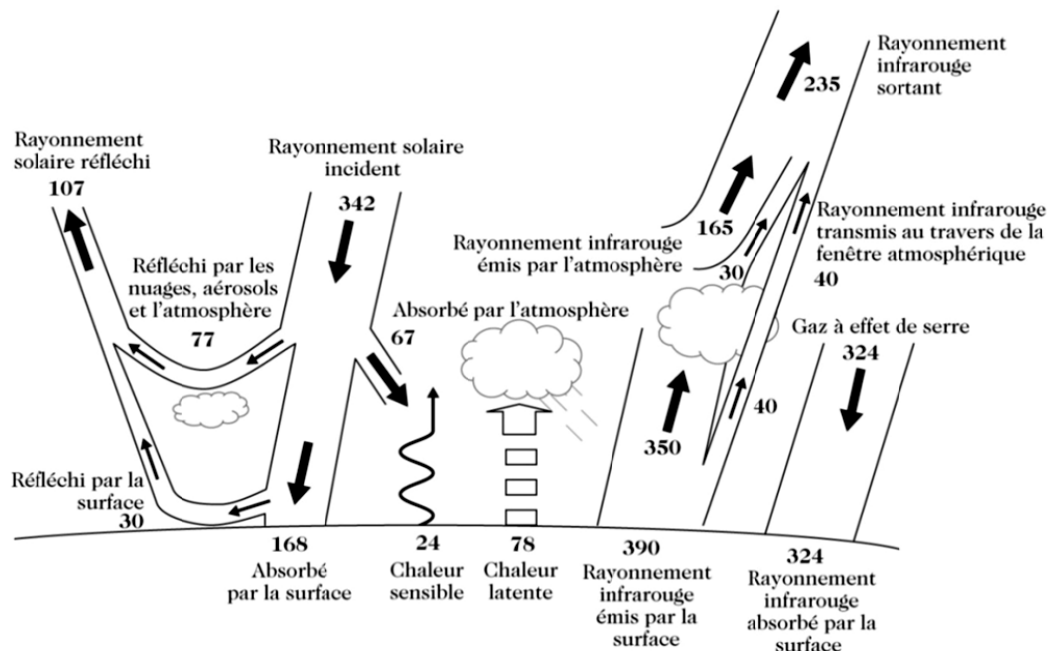


Figure 2. Schéma général du bilan énergétique terrestre (d'après Kiehl et Trenberth, 1997).

Le réchauffement de l'atmosphère et du sol induit l'émission de rayonnement infrarouge, apportant l'énergie nécessaire aux mouvements des masses d'air et d'eau qui régissent le climat. Le rayonnement infrarouge transmis au travers de la fenêtre atmosphérique et l'albédo compensent exactement le flux total solaire reçu, permettant ainsi un équilibre thermique.

L'effet de serre naturel résulte de l'absorption par certains gaz d'une partie du rayonnement infrarouge, qu'ils réémettent vers la surface terrestre en induisant un flux radiatif estimé à  $155 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ . Les gaz à effet de serre jouent donc un rôle majeur de régulation de la température, mais les émissions anthropiques à l'origine du réchauffement global perturbent l'équilibre établi. Les aérosols, dont l'incertitude des estimations quant aux forçages radiatifs qu'ils induisent est la plus grande (Figure 1), ont la capacité de refléter le rayonnement solaire incident, mais aussi l'énergie sortant du système climatique (section 1.5.3). Il est donc nécessaire de clarifier leur contribution (IPCC 2007), mais pour cela, il faut tout d'abord connaître leur distribution et leur nature.

### 1.2 Structure et composition de l'atmosphère

L'atmosphère est l'enveloppe gazeuse qui entoure notre planète. La variation de la température avec l'altitude, présentée dans la Figure 3, permet de la structurer en quatre *sphères* concentriques: troposphère, stratosphère, mésosphère et thermosphère, séparées par des zones de transition étroites (*pauses*): tropopause, stratopause, mésopause.

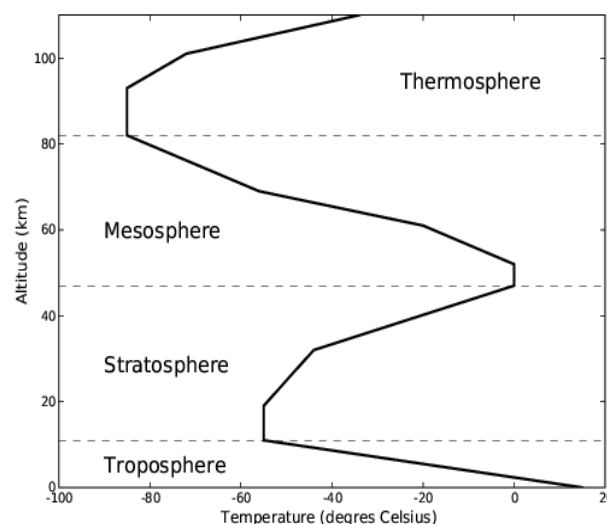


Figure 3. Profil de température montrant la structure en couches de l'atmosphère.

La troposphère se situe entre la surface terrestre et la tropopause, dont l'altitude varie selon la latitude (8-10 km aux pôles, 16-18 km à l'équateur) et la saison (altitudes plus élevées l'été que l'hiver). Au sein de la troposphère on distingue la couche limite, qui s'étend depuis la surface jusqu'à 0,5 à 3 km, de la troposphère libre, située aux altitudes supérieures. La troposphère est la couche atmosphérique la plus dense, et se caractérise par la présence d'importantes quantités de vapeur d'eau -dont la teneur diminue avec l'altitude- et par des mouvements verticaux localisés: lorsqu'il est réchauffé par le rayonnement solaire, le sol retransmet une partie de l'énergie à l'air environnant, qui s'élève par convection vers de plus faibles pressions; ces mouvements à petite échelle, appelés mouvements convectifs, font de la troposphère la couche la plus turbulente de l'atmosphère. Dans la tropopause la température se stabilise sur quelques kilomètres, ce qui la rend quasi-hermétique aux échanges entre la troposphère et la stratosphère.

## 1.2. Structure et composition de l'atmosphère

La stratosphère est située entre la tropopause et 50 km d'altitude. Elle se caractérise par une augmentation de la température avec l'altitude, du fait de la présence de la couche d'ozone (section 1.4.1) qui joue le rôle de régulation thermique car elle absorbe le rayonnement ultra-violet et réémet dans l'infrarouge. Le gradient positif confère à la stratosphère une grande stabilité vis-à-vis des mouvements verticaux, ce qui empêche la convection et stabilise les conditions atmosphériques. Cependant, la stratosphère est une zone riche en interactions dynamiques qui contrôlent l'équilibre de la température par moyen de mouvements horizontaux, et qui permettent une distribution globale des constituants. Au sein des structures stratifiées peuvent persister des fines couches d'aérosols (section 1.6).

La stratopause fait la jonction entre la stratosphère et la mésosphère. Cette dernière s'étend jusqu'à environ 85 km d'altitude, où les températures peuvent atteindre les valeurs minimales de l'atmosphère. Les températures se stabilisent à son sommet dans la mésopause, au-dessus de laquelle se trouve la thermosphère, qui peut s'étendre jusqu'à plus de 500 km d'altitude et atteindre des températures de plus de 1500°C en fonction de l'activité solaire.

Plus de 99,9% de la masse totale atmosphérique est concentrée dans les 50 premiers kilomètres à partir du sol. La composition atmosphérique (Tableau 1-1) est un mélange de gaz de diverses origines, de particules en suspension (aérosols) et d'hydrométéores (gouttelettes d'eau et cristaux de glace). En fraction volumique, le N<sub>2</sub> est le principal constituant (~78%), suivi du O<sub>2</sub> (~21%) et de la vapeur d'eau, dont la quantité est variable. Un nombre de gaz à l'état de traces sont présents, ainsi que les GES comme le CO<sub>2</sub>, l'ozone troposphérique, le CH<sub>4</sub>, le N<sub>2</sub>O ou la vapeur d'eau. Des espèces réactives à très courte durée de vie sont présentes en faibles quantités, mais jouent un rôle primordial car elles induisent des transformations aux autres composés émis à la surface.

Constituants	% (en volume)	Temps de résidence
Diazote (N <sub>2</sub> )	78,08	> 100 ans
Dioxygène (O <sub>2</sub> )	20,95	> 100 ans
Argon (Ar)	0,93	> 100 ans
Dioxyde de carbone (CO <sub>2</sub> )	0,04	Variable
Néon (Ne)	1,8·10 <sup>-3</sup>	> 100 ans
Hélium (He)	1,8·10 <sup>-3</sup>	> 100 ans
Méthane (CH <sub>4</sub> )	1,7·10 <sup>-4</sup>	9 ans
Hydrogène (H <sub>2</sub> )	5,0·10 <sup>-5</sup>	10 ans
Protoxyde d'azote (N <sub>2</sub> O)	3,0·10 <sup>-5</sup>	> 100 ans
Monoxyde de carbone (CO)	1,2·10 <sup>-5</sup>	2 mois
Ozone (O <sub>3</sub> )	2-200·10 <sup>-6</sup>	1 à 2 mois
Ammoniac (NH <sub>3</sub> )	0,1 à 1·10 <sup>-6</sup>	20 jours
Dioxyde de soufre (SO <sub>2</sub> )	2·10 <sup>-8</sup>	1 jour
Dioxyde d'azote (NO <sub>2</sub> )	1·10 <sup>-7</sup>	1 jour
Vapeur d'eau (H <sub>2</sub> O)	0-4	6 à 15 jours

Tableau 1-1. Constituants majeurs de l'atmosphère en dessous de 100 km (Delmas et al., 2005).

La distribution des constituants atmosphériques dépend de leur temps de résidence et des durées caractéristiques des échanges horizontaux et verticaux au sein de l'atmosphère. Pour les gaz à très longue durée de vie, les distributions sont homogènes sur l'ensemble de la Terre. Les espèces qui atteignent la stratosphère y arrivent transportées depuis la troposphère pour la plupart, et ont une longue durée de vie.



### 1.3 Dynamique atmosphérique

La dynamique est responsable de la distribution géographique et verticale des constituants atmosphériques; le transport a lieu sous la forme d'advection, de convection et de diffusion, avec les plus grandes échelles du mouvement sur le plan horizontal.

Deux familles d'ondes d'origine troposphérique gouvernent la dynamique dans la stratosphère, et se propagent jusqu'à la mésosphère: il s'agit des ondes de gravité et des ondes de Rossby (Brasseur et Solomon, 2005). Les ondes de gravité sont créées par le déplacement vertical d'une parcelle d'air dans un fluide stratifié et stable. Elles sont typiquement dues au passage de reliefs, et se manifestent par l'ondulation verticale des surfaces isentropes (surfaces de température potentielle constante). Les ondes de Rossby, également appelées ondes planétaires, sont créées dans la troposphère par la perturbation causée par la force de Coriolis. Elles se propagent verticalement dans la stratosphère, principalement aux moyennes latitudes lorsque les vents sont contrôlés par des régimes d'ouest, et sont de plus forte amplitude dans l'hémisphère nord à cause de l'alternance de continents et océans.

#### 1.3.1 Circulation générale

La circulation générale tend à rétablir l'équilibre radiatif en transportant l'énergie des régions excédentaires vers les régions déficitaires.

Dans la troposphère, la décroissance de la température avec l'altitude favorise le transport vertical, assuré par les mouvements convectifs. Globalement, les zones de basses pressions sont associées au mouvement ascendant des masses d'air, et les zones de hautes pressions à une subsidence ou mouvement descendant. Le mélange vertical troposphérique est donc relativement efficace. Le transport méridien se fait principalement grâce à trois grandes zones de perturbations: dans la zone intertropicale se trouve le système convectif principal, la cellule de Hadley, qui présente ascendance des masses d'air à l'équateur et subsidence vers 30° de latitude; aux moyennes latitudes, des cellules de sens opposé et d'intensité beaucoup plus faible sont connues sous le nom de cellules de Ferrel; une troisième cellule occupe les régions polaires. Les circulations zonales et verticales dans le plan longitude-altitude dans la bande intertropicale sont appelées circulations de Hadley-Walker.

Le transport de constituants troposphériques vers la stratosphère est difficile au-dessus de la tropopause, car la stratification inhibe les mouvements verticaux (en augmentant ainsi à la fois le temps de résidence des aérosols qui se trouvent dans la stratosphère). Cependant, le passage est possible à travers la tropopause tropicale par convection, et depuis la troposphère tropicale vers la basse stratosphère extratropicale par transport des constituants le long des surfaces isentropes (Figure 4). Dans le cas de fortes éruptions volcaniques (section 1.6.4), l'accès des aérosols à la stratosphère peut se faire directement, car les particules éjectées possèdent une grande vitesse et une température élevée. Il arrive aussi que des particules soient directement injectées dans la stratosphère lors de grands feux de biomasse (section 1.6.5).

### 1.3.2 Éléments de la dynamique stratosphérique

La principale composante de la circulation stratosphérique est le vent zonal, qui représente la vitesse du vent dans la direction longitudinale. Par convention, les vitesses sont positives pour des vents d'ouest « *westerlies* » et négatives pour des vents d'est « *easterlies* ». Les forts gradients de température entre les régions équatoriales et polaires permettent aux vents d'atteindre les vitesses maximales pendant les solstices (fin juin et fin décembre). La transition progressive d'un régime à l'autre après les équinoxes (fin mars et fin septembre) produit une circulation inversée dans des zones de vents violents appelées courants jets. Les courants jets inhibent le transport méridien et divisent la stratosphère en trois zones: la zone intertropicale, la zone surf où déferlent les ondes planétaires, et la zone polaire.

#### 1.3.2.1 Circulation méridienne de Brewer-Dobson

Le transport méridien stratosphérique a été mis en évidence par les premières observations de quantités de vapeur d'eau, très faibles dans la stratosphère (Brewer, 1949), et par la distribution d'ozone stratosphérique, produit aux tropiques mais que l'on retrouve fondamentalement aux pôles (Dobson, 1956). L'ensemble de ces études implique l'existence d'une cellule de circulation stratosphérique à grande échelle, appelée circulation de Brewer-Dobson: elle consiste en un mouvement ascendant des masses d'air à travers la tropopause dans les zones intertropicales, un transport vers les moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère d'hiver et une subsidence aux moyennes latitudes et au niveau des pôles aidée par la circulation dans le vortex polaire. Aux équinoxes, lors de l'inversion des vents, la circulation méridienne s'inverse également pour agir sur l'hémisphère opposé.

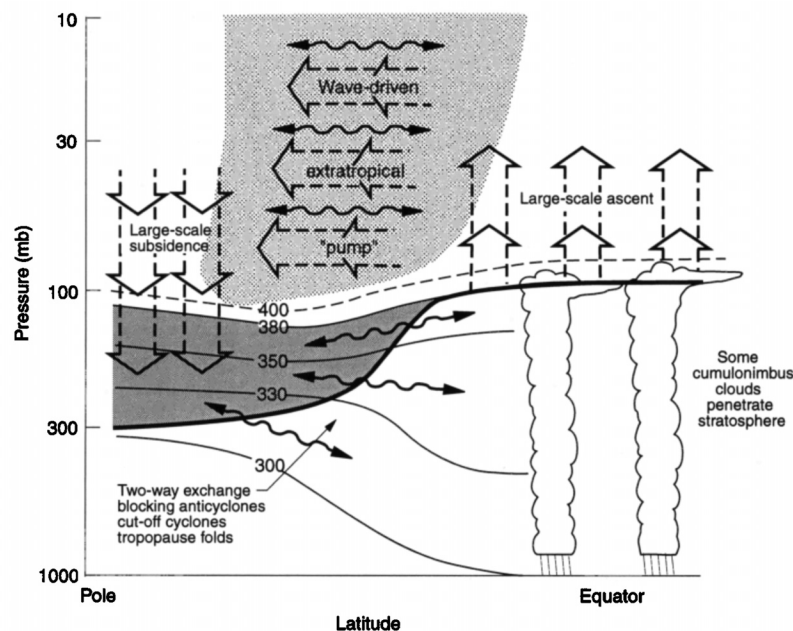


Figure 4. Aspects dynamiques de l'échange troposphère-stratosphère et de la circulation stratosphérique (Holton et al., 1995). La stratosphère est divisée en deux zones: une zone au-dessus d'environ 17 km ou 110 hPa (*stratospheric overworld*), et une zone dans laquelle les surfaces isentropes traversent la tropopause (*lowermost stratosphere*).

La circulation de Brewer-Dobson se fait par le moyen de la pompe extratropicale, créée par le déferlement des ondes de Rossby. Elle entraîne un mouvement des masses d'air beaucoup plus lent que celui qui a lieu dans les cellules convectives de la troposphère.

Des mesures satellitaires d'espèces à longue durée de vie ont confirmé ce mécanisme essentiel pour la redistribution des constituants mineurs, qui est également responsable du transport des aérosols et de leurs gaz précurseurs.

### 1.3.2.2 Le vortex polaire

Lors de l'entrée dans la nuit polaire, la disparition du rayonnement solaire augmente les différences de température entre les moyennes et les hautes latitudes. L'air stratosphérique se déplace de l'équateur vers le pôle, et le courant jet polaire, qui est un vent d'ouest dans l'hémisphère d'hiver, entraîne la formation d'un tourbillon d'air stratosphérique de circulation très rapide.

Le vortex forme une barrière dynamique empêchant l'échange entre les masses d'air intérieures et les masses d'air environnantes. La température au sein du vortex atteint des valeurs propices à la formation de nuages stratosphériques polaires (section 1.6.2), qui fournissent le support nécessaire pour que les réactions de destruction de l'ozone aient lieu (section 1.4.1) dès l'arrivée du printemps, par activation photo-chimique. Les plus basses températures sont atteintes en Antarctique, où le vortex est caractérisé par des vents zonaux plus forts. En Arctique, le vortex est moins stable du fait des masses terrestres et reliefs qui accentuent les ondes de Rossby. En mars ou avril dans l'hémisphère nord (octobre ou novembre dans l'hémisphère sud), lors de la transition des régimes des vents d'hiver aux régimes d'été, le vortex se brise, permettant le transport des masses d'air appauvries en ozone et le mélange avec celles des moyennes latitudes.

### 1.3.2.3 Les réchauffements stratosphériques soudains

Au courant de l'hiver arctique, un ralentissement des vents d'ouest, provoqué par une amplification des ondes planétaires de Rossby, est à l'origine de phénomènes appelés réchauffements stratosphériques soudains (Scherhag, 1960), en anglais *Sudden Stratospheric Warmings*, *SSWs*. Ces événements n'ont pas été observés en Antarctique -excepté en 2002 (Dowdy et al., 2004, Ricaud et al., 2005)-, car les ondes de Rossby y sont d'amplitude plus petite.

Les conséquences des SSWs varient selon leur intensité. Lors d'événements majeurs (*major warmings*), un changement de direction des vents peut se produire dans l'espace de quelques jours, accompagné d'une hausse de température de plusieurs dizaines de degrés et d'un déplacement du vortex polaire, qui peut même être brisé. Les réchauffements mineurs (*minor warmings*) sont moins dramatiques; ils produisent une hausse de température moins importante, et un ralentissement des vents qui ne provoque pas leur changement de direction. Les réchauffements finaux (*final warmings*) ont lieu lors de la transition au régime d'été: les vents changent de direction, et la phase d'est prédomine jusqu'à l'hiver suivant.

### 1.3.2.4 Oscillation quasi-biennale

La direction et la vitesse des vents zonaux aux tropiques sont dominés par l'oscillation quasi-biennale (*Quasi Biennial Oscillation*, QBO), qui consiste en l'alternance symétrique entre les régimes des vents d'est et les régimes des vents d'ouest avec des périodes variant entre 24 et 30 mois (Baldwin et al., 2001).

Le changement de régime se produit dans la moyenne stratosphère et se propage vers les plus basses altitudes, à environ 1 km par mois jusqu'à se dissiper dans la tropopause tropicale (Figure 5). La QBO s'étend en latitude jusqu'à 10° ou 15° de chaque côté de l'équateur, mais ses effets sont perceptibles jusqu'aux régions des hautes latitudes (Holton et Tan, 1980).

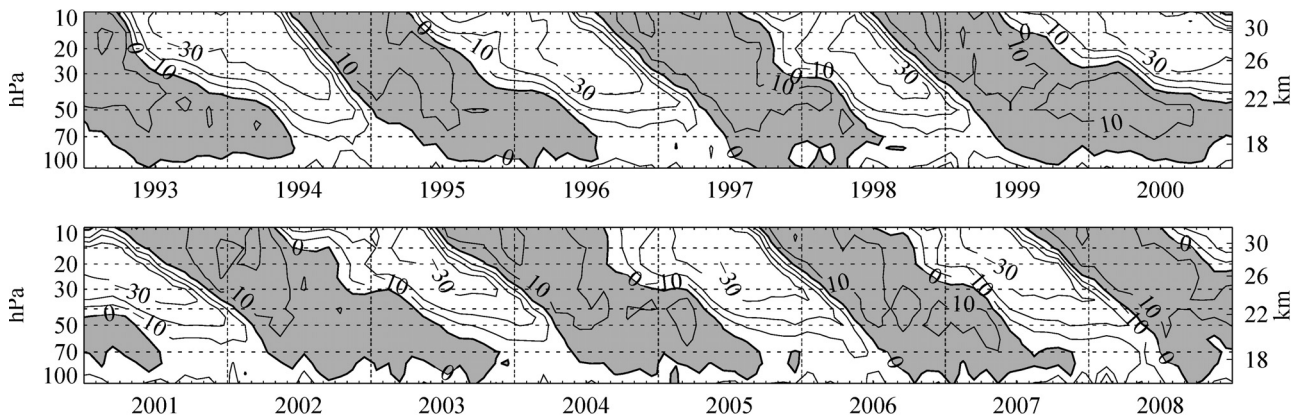


Figure 5. Oscillation quasi biennale de 1993 à 2008 d'après les vents zonaux de la station à Singapour (1°N, 104°E). Les vents d'ouest sont tracés en gris. Stratospheric research group, FSU Berlin, <http://www.geo.fu-berlin.de/met/ag/strat/produkte/qbo/index.html>

L'effet de l'oscillation quasi biennale sur les aérosols est traité par de nombreux auteurs depuis Trepte et al. (1992, 1994), Hitchman et al. (1994), ou Thomason et al. (1997b). Ces auteurs décrivent la distribution des aérosols dans la basse stratosphère, autour de 20° de latitude, qui est contrôlée par la phase de l'oscillation quasi-biennale: en régime de vents d'est une ascendance des aérosols se produit au-dessus de l'équateur, alors qu'en situation de vents d'ouest l'effet contraire est observé, c'est-à-dire un affaissement ou subsidence des particules. Ce phénomène est dû principalement à l'interaction de la QBO avec la circulation de Brewer-Dobson, en l'accéléralant lors de la phase d'est, et en la ralentissant lors de la phase d'ouest.

### 1.3.2.5 Oscillation semi-annuelle

Au-delà de 35 km, la QBO coexiste avec une oscillation semi-annuelle (*Semi Annual Oscillation*, SAO) d'alternance du vent zonal équatorial, qui naît dans la mésosphère et se propage dans la stratosphère.

## 1.4 Chimie stratosphérique

### 1.4.1 Chimie de l'ozone

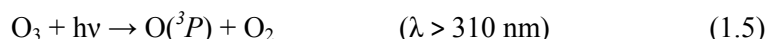
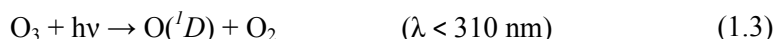
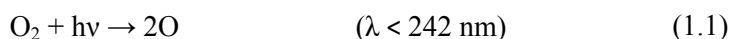
L'ozone est un composant naturel de l'atmosphère et un des composés stratosphériques minoritaires. Les concentrations maximales peuvent atteindre  $7 \cdot 10^{12}$  molécules par  $\text{cm}^3$  et se situent vers 18 km aux pôles et autour de 25 km dans la zone intertropicale, dans une région connue sous le nom de couche d'ozone, dans laquelle est concentrée 90% de la colonne verticale d'ozone atmosphérique. Dans cette région il absorbe fortement une grande partie du rayonnement électromagnétique dans l'ultraviolet (continuum de Hartley entre 200 et 300 nm et bandes de Huggins de 300 à 350 nm), et plus faiblement dans le visible (bande de Chappuis de 450 à 650 nm). Cette propriété d'absorption dans l'UV produit le gradient de température positif de la stratosphère, et en agissant comme filtre l'ozone protège la biosphère du rayonnement solaire nocif de courtes longueurs d'onde.

Dans la moyenne stratosphère, le temps de vie de l'ozone est relativement long, de quelques semaines à quelques mois en fonction de l'altitude. Sa distribution globale est donc fortement influencée par les processus dynamiques: il est produit principalement aux tropiques et moyennes latitudes, et transporté vers les pôles par la circulation de Brewer-Dobson. Au-delà de 50 km d'altitude, la durée de vie de l'ozone diminue fortement: elle est inférieure à un jour et dominée par un cycle diurne.

Des mesures d'ozone effectuées en Antarctique au début des années 1980 révèlent la formation d'un trou d'ozone durant le printemps austral (Farman et al., 1985). Les réactions chimiques de production et destruction catalytique de l'ozone ont depuis été très étudiées, et encore aujourd'hui constituent une thématique d'intérêt majeur.

#### 1.4.1.1 Le cycle de Chapman

Le cycle de Chapman (Chapman, 1930) décrit les réactions de l'ozone stratosphérique à partir des composés oxygénés. La photodissociation de l'oxygène dans la moyenne stratosphère à des longueurs d'onde inférieures à 242 nm produit de l'oxygène atomique, qui en présence d'une molécule d'air (M) se combine rapidement pour former une molécule d'ozone. Celle-ci peut être détruite par réaction avec l'oxygène atomique (réaction 1.6), ou photo-chimiquement (réactions 1.3 et 1.5). Aux longueurs d'onde inférieures à 310 nm, la photodissociation se fait par absorption dans la bande de Hartley, et produit un atome d'oxygène dans l'état excité ( $^1D$ ), qui retourne rapidement à l'état fondamental par collision avec une molécule d'air. Pour des longueurs d'onde supérieures à 310 nm, le produit de la réaction est directement un atome dans l'état fondamental.



D'après le cycle de Chapman, dans la stratosphère la concentration d'ozone résulte de l'équilibre naturel entre ces réactions.

### 1.4.1.2 Cycles catalytiques de destruction de l'ozone

Dans les années qui suivent la découverte de Chapman, il s'est avéré que d'autres espèces en plus de l'oxygène atomique pouvaient participer à la destruction chimique de l'ozone par le moyen de cycles catalytiques faisant participer l'hydrogène atomique (Bates et Nicolet, 1950), les oxydes d'azote (Crutzen, 1970), ainsi que des espèces halogénées (Cl, Br, I, F). Molina et Rowland (1974) identifient les chlorofluorocarbures (CFCs) d'origine anthropique comme une source majeure d'espèces chlorées participant à la destruction de l'ozone. Sous leur forme active, les radicaux agissent comme catalyseurs car ils augmentent la vitesse du processus tout en étant récupérés à la fin du cycle. Ils sont désignés ci-dessous par X (OH, NO, Cl, Br) et XO (HO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, ClO, BrO) :



Les réactions entre les différentes espèces mènent à la formation de composés inactifs ou réservoirs naturels pour le chlore et les oxydes d'azote, tels que l'acide chlorhydrique (HCl), le nitrate de chlore (ClONO<sub>2</sub>), l'acide hypochloreux (HOCl) et le pentoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>).

### 1.4.1.3 Les oxydes d'azote

La famille des NO<sub>x</sub> est composée de deux espèces: l'oxyde d'azote, NO, et le dioxyde d'azote, NO<sub>2</sub>. Dans la moyenne stratosphère, les NO<sub>x</sub> interviennent dans la destruction catalytique de l'ozone (équations 1.7, 1.8), particulièrement pendant l'été. Cependant, ce processus est peu efficace dans la gamme d'altitude correspondant au maximum d'ozone.

L'effet des NO<sub>x</sub> est différent dans la basse stratosphère, où NO<sub>2</sub> joue un rôle primordial dans le processus de désactivation du chlore et du brome, en transformant des espèces actives en espèces réservoir :



Il est donc important de comprendre la chimie des NO<sub>x</sub> et leur conversion en NO<sub>y</sub>, (NO<sub>y</sub>: NO<sub>x</sub>, NO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>). La source principale des NO<sub>x</sub> dans la stratosphère est le N<sub>2</sub>O, qui est très stable dans la troposphère :



Les NO<sub>x</sub> sont plus abondants en absence de lumière sous forme de NO<sub>2</sub> (équation 1.13) qui se combine avec l'ozone pour former NO<sub>3</sub> (1.14). Cette réaction est fortement dépendante de la température, et affecte la diminution nocturne de NO<sub>2</sub>. NO<sub>3</sub> est presque complètement photodissocié dès le lever du soleil. La chimie de ces espèces en absence de lumière est relativement simple avec les réactions suivantes :

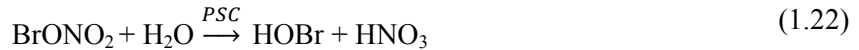
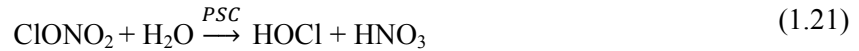


Parmi les  $\text{NO}_y$ , on peut considérer deux espèces réservoir de  $\text{NO}_x$ : le pentoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}_5$ ) qui se forme après le coucher du soleil à partir de la réaction à trois corps entre  $\text{NO}_2$  et  $\text{NO}_3$  (équation 1.15), et l'acide nitrique,  $\text{HNO}_3$ .

### 1.4.1.3 Réactions en phase hétérogène

Les réactions catalytiques en phase gazeuse ne permettent pas d'expliquer la formation du trou d'ozone antarctique au printemps polaire. Il faut en plus tenir compte des réactions en phase hétérogène qui ont lieu à la surface des aérosols.

Bien que la concentration en vapeur d'eau dans la stratosphère soit très faible, des nuages stratosphériques polaires (section 1.6.2) se forment dans le vortex polaire. Ces nuages jouent un rôle majeur dans la destruction de l'ozone stratosphérique, car ils fournissent des sites pour que des réactions en phase hétérogène aient lieu à leur surface :



Ces réactions transforment les réservoirs chlorés et bromés inactifs tels que  $\text{ClONO}_2$  et  $\text{BrONO}_2$  en réservoirs moins stables (Solomon et al., 1986) et constituent une perte importante de  $\text{NO}_x$  par les processus de dénitrification, car le produit principal de ces réactions est un réservoir de  $\text{NO}_x$  plus stable ( $\text{HNO}_3$ ). Lorsque les PSC atteignent une masse suffisante pour sédimenter, une dénitrification de la stratosphère se produit, favorisant une fois encore la destruction d'ozone puisqu'elle engendre la diminution d'une source potentielle de  $\text{NO}_x$  qui inhibe les cycles catalytiques de destruction d'ozone. Lorsque les réservoirs instables sont soumis à la lumière solaire au printemps,  $\text{Cl}_2$  et  $\text{Br}_2$  se dissocient pour donner les radicaux  $\text{Cl}$  et  $\text{Br}$  qui détruisent directement l'ozone.

Les aérosols sulfatés à toutes les latitudes et saisons catalysent aussi ces réactions hétérogènes (Brasseur et al., 1990). En particulier, dans les mois qui suivent les éruptions volcaniques majeures, une diminution significative de la concentration d'ozone stratosphérique est observée.

## 1.5 Aérosols: généralités

Bien que l'atmosphère terrestre consiste principalement en un mélange de gaz, elle contient également de la matière en suspension en phase liquide et solide: il s'agit des aérosols et des hydrométéores. Les aérosols atmosphériques ont des tailles très variables, avec des diamètres qui englobent plusieurs ordres de magnitude, de quelques nanomètres à quelques dizaines de micromètre. Leur concentration varie de la cinquantaine de particules par  $\text{cm}^3$  dans les régions très propres, i.e. au-dessus de l'Antarctique, jusqu'à des centaines de milliers de particules par  $\text{cm}^3$  dans des milieux urbains pollués.

### 1.5.1 Définition et classification

Les aérosols sont toutes les particules liquides et solides, microniques ou submicroniques en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace. Le terme aérosol étant générique, il désigne des composés de natures, sources, distributions en taille, formes, effets radiatifs et processus de formation différents. Leurs propriétés sont variables d'autant plus que dans l'atmosphère ils se trouvent souvent sous la forme de mélanges.

Il existe diverses classifications d'après différents critères. D'après leur gamme de taille, on distingue 3 catégories d'aérosols:

- Les noyaux d'Aitken, également appelés embryons ou noyaux de condensation, ont des diamètres allant de  $10^{-4}$  à  $0,1 \mu\text{m}$ .
- Les fines particules ou agglomérats, pour des diamètres compris entre  $0,1$  et  $1 \mu\text{m}$ .
- Les grosses particules, avec des diamètres compris entre  $1$  et  $100 \mu\text{m}$ .

On peut également classer les aérosols en fonction de leur source ou mécanisme de formation:

- Les aérosols primaires sont émis directement dans l'atmosphère depuis la surface de la Terre (ou depuis l'espace), sous forme liquide ou solide, par différents processus. Le type d'émission détermine la nature de la particule et donc sa composition. Les processus de combustion, qui peut être naturelle pour les feux de biomasse ou anthropique dans le cas de combustions diverses (activité industrielle, incinération d'ordures, engins automobiles) émettent principalement des suies (fines particules carbonées, section 1.6.5). L'action du vent sur les surfaces terrestres ou océaniques injecte des sels marins et des particules minérales comme des poussières désertiques ou des silicates résultant de l'érosion des sols. L'activité volcanique (section 1.6.4) émet de grandes quantités de particules dans l'atmosphère et a été amplement étudiée. D'autres émissions anthropiques, telles que celles provenant de constructions ou exploitations minières, et naturelles, telles que les émissions d'aérosols biogéniques par les débris de plantes, d'humus, de bactéries, de champignons, d'algues, de pollens, etc. sont à l'origine d'émissions d'autres types de particules qui évoluent dans la troposphère.



➤ Les aérosols secondaires résultent de la transformation dans l'atmosphère de gaz atmosphériques en particules, processus qui a lieu en plusieurs étapes (Figure 6) :

- La première étape est la nucléation, lors de laquelle une particule est générée à partir de vapeur saturée. La nucléation de particules solides ou liquides à partir de précurseurs gazeux ou ioniques est le mécanisme de base de formation de nouvelles particules dans l'atmosphère. Deux types de nucléation sont possibles :

-La nucléation homogène implique uniquement des molécules de gaz. Dans la stratosphère, quelques uns des systèmes de nucléation sont les couples  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{HCl}/\text{H}_2\text{O}$ .

-La nucléation hétérogène implique une surface étrangère, par exemple un ion ou une particule solide. Dans la stratosphère, les particules météoriques ou les suies peuvent servir de noyaux de condensation.

Les particules formées dans cette étape sont des embryons ou noyaux d'Aitken; bien qu'ils soient nombreux, ces aérosols de petit diamètre sont difficiles à détecter.

- Pendant les étapes de condensation et de coagulation, les noyaux d'Aitken donnent lieu à des fines particules dont la masse demeure suffisamment faible pour qu'elles puissent rester en suspension dans l'atmosphère. La condensation de molécules gazeuses à la surface des particules contribue au grossissement de la taille moyenne des aérosols, mais ne varie pas leur nombre. La coagulation, qui se produit par adhésion d'une particule à une ou plusieurs autres, implique un grossissement et une diminution du nombre d'aérosols.

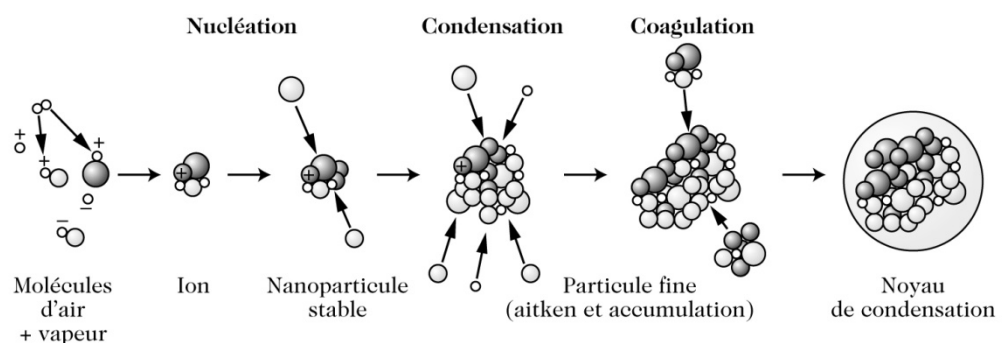


Figure 6. Évolution des particules depuis la nucléation jusqu'à la formation de noyaux de condensation (Delmas et al., 2005).

Les aérosols sulfatés (section 1.6.3), produits dans la stratosphère par l'oxydation du  $\text{SO}_2$ , constituent le principal type d'aérosol secondaire.

### 1.5.2 Distribution en taille

L'évolution d'une population de particules par coagulation et condensation a lieu principalement lorsque la concentration de particules est élevée, et lorsque les particules sont de petite taille. Dans le cas de grosses particules, la coagulation et la condensation sont beaucoup moins efficaces, ce qui produit un phénomène extrêmement important pour l'aérosol atmosphérique: les particules tendent à s'accumuler autour de certains diamètres (Figure 7), que ni la condensation, ni la coagulation, ni la sédimentation ne peuvent faire évoluer. Ces diamètres favorisent le mode d'une population, c'est à dire le diamètre des particules le plus fréquemment rencontré.

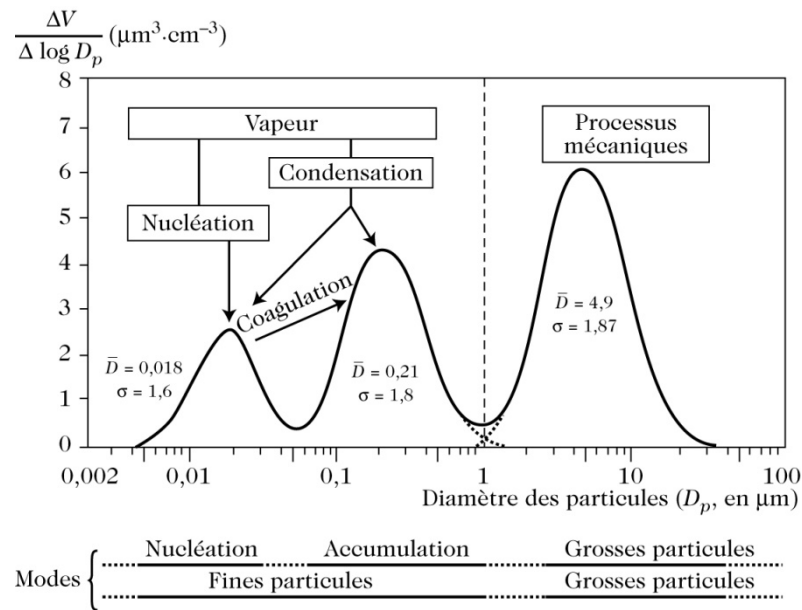


Figure 7. Modes de nucléation, de condensation des particules submicrométriques, et de grosses particules de diamètre supérieur au micromètre (Delmas et al., 2005).

Le mode grossier est composé de particules ayant un diamètre supérieur à 1  $\mu\text{m}$ .

Le mode des fines particules regroupe les modes de nucléation et d'accumulation :

- Le mode de nucléation est constitué de particules dont le diamètre est de l'ordre du centième de micromètre, dans tous les cas inférieur à 0,1  $\mu\text{m}$ .
- Le mode d'accumulation est quant à lui constitué de particules qui proviennent soit du grossissement de noyaux par condensation, soit de la coagulation de particules du mode nucléation. Les particules du mode d'accumulation ont un diamètre de l'ordre du dixième de micromètre, compris entre 0,1  $\mu\text{m}$  et 1 à 2  $\mu\text{m}$ .

La connaissance de la granulométrie est une information importante, puisqu'elle permet, par exemple, de déterminer l'origine des particules (primaire ou secondaire), mais aussi une partie de leurs propriétés optiques. Lors de l'étude des aérosols, on ne considère pas une particule isolée, mais un ensemble de particules. C'est pourquoi il est souvent plus simple de travailler avec une fonction continue ou distribution en taille, en ajustant une loi de probabilité à la distribution mesurée.

La distribution en taille est donc une fonction analytique qui permet de représenter une population d'aérosols. La plus fréquemment utilisée pour caractériser la distribution d'une population de particules atmosphériques de tailles variables est la loi log-normale. Elle permet un bon accord avec les observations. La description mathématique de la distribution log-normale est la suivante (O'Neill et al., 2000) :

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r \ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{\ln r - \ln r_m}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right] \quad (1.24)$$

Avec :

- $n(r)dr$ : nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre  $r$  et  $r + dr$  (en  $\mu\text{m}$ )

- $N_0$ : concentration totale d'aérosols en  $\text{cm}^{-3}$

- $r_m$ : rayon médian caractéristique de la distribution en taille des particules

- $\sigma_g$ : déviation standard géométrique de la distribution en taille des aérosols

Notons que trois paramètres ( $N_0$ ,  $r_m$ ,  $\sigma_g$ ) suffisent à décrire un mode de particules.

Dans la stratosphère, les aérosols de fond sont souvent représentés par des distributions log-normales bimodales, avec un mode centré autour d'un rayon 0,1  $\mu\text{m}$  et un mode à 0,3 ou 0,4  $\mu\text{m}$  (SPARC, 2006). Lors d'éruptions volcaniques, le mode plus grand est plus prononcé. Une distribution multimodale supérieure à deux modes est plus proche de la réalité, mais la limite de cette approche est la nécessité de déterminer de plus en plus de paramètres: il faudra  $N_0^1$ ,  $r_m^1$ ,  $\sigma_g^1$ ,  $N_0^2$ ,  $r_m^2$ ,  $\sigma_g^2$  pour une distribution bimodale,  $N_0^1$ ,  $r_m^1$ ,  $\sigma_g^1$ ,  $N_0^2$ ,  $r_m^2$ ,  $\sigma_g^2$ ,  $N_0^3$ ,  $r_m^3$ ,  $\sigma_g^3$  pour une distribution tri-modale, et ainsi de suite.

### 1.5.3 Effets climatiques des aérosols

L'interaction entre la lumière et les particules d'aérosol affecte la quantité d'énergie arrivant à la surface de la Terre, mais aussi la quantité d'énergie qui se dirige vers l'espace. Les aérosols ont donc une influence importante sur le climat, et l'effet des aérosols sur le bilan radiatif est une des principales motivations pour leur étude. On distingue généralement deux types de contributions, communément nommées effet direct et effet indirect (Haywood et Boucher, 2000).

#### 1.5.3.1 Effet direct

L'effet direct concerne uniquement l'influence des aérosols sur le rayonnement, et décrit les mécanismes d'absorption et de diffusion de la lumière par les aérosols. Les particules, contrairement aux gaz à effet de serre qui agissent uniquement sur le flux d'énergie sortant, peuvent influencer le rayonnement solaire incident dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge par l'effet parasol en réfléchissant une partie du rayonnement vers l'espace (effet refroidissant), ainsi que le rayonnement tellurique dans l'infrarouge thermique, qui est rétrodiffusé par les particules (effet réchauffant).

Les paramètres clés pour déterminer ces effets sont les propriétés optiques des aérosols, i.e. leurs coefficients d'absorption et de diffusion (section 2.2). La capacité des aérosols à refroidir la colonne atmosphérique en dessous d'eux prédomine, et le forçage radiatif global estimé pour l'effet direct est négatif. Cependant, les contributions sont différentes en fonction du type d'aérosol. Ainsi, les sulfates provenant de l'oxydation du  $\text{SO}_2$  ont un fort pouvoir de rétrodiffusion, et leur forçage est estimé à  $-0,4 \pm 0,2 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ , tandis que le carbone noir émis par l'utilisation de combustibles fossiles, ou les aérosols carbonés provenant de feux de biomasse ont des propriétés d'absorption qui les distinguent des autres composantes de l'aérosol; leur forçage est de  $0,2 \pm 0,15 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$  et  $0,03 \pm 0,12 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ , respectivement (IPCC, 2007).

### 1.5.3.2 Effets indirects

À l'effet direct viennent s'ajouter plusieurs effets indirects, qui traitent les mécanismes par lesquels les aérosols perturbent l'équilibre radiatif Terre-Atmosphère par la modulation de l'albédo des nuages et de leur couverture; les aérosols participent également à la composition chimique des précipitations, car ils constituent des noyaux de condensation qui initient la formation des gouttelettes d'eau nuageuse et des cristaux de glace. Le paramètre clé pour déterminer ces effets indirects, qui résultent de la modification, par les aérosols, des propriétés physiques et microscopiques des nuages, ainsi que de leurs propriétés radiatives et temps de résidence, repose sur l'efficacité d'une particule à servir de noyau de condensation nuageuse; ce paramètre dépend de la taille, de la composition chimique et de l'environnement ambiant de l'aérosol.

Le premier effet indirect, également appelé effet albédo des nuages (Lohmann et Feichter, 2005), se traduit par un refroidissement climatique, provoqué par la capacité des aérosols à servir de noyaux de condensation à la vapeur d'eau atmosphérique: les aérosols augmentent donc le nombre de gouttelettes, qui sont alors plus petites, augmentant ainsi l'albédo des nuages. Le second effet indirect agit sur la durée de vie du nuage, qui augmente en présence d'aérosols, car les gouttelettes formées étant plus petites, elles précipitent moins facilement, et modifient la teneur en eau liquide et l'épaisseur du nuage.

L'effet des aérosols sur le climat ne dépend donc pas uniquement de leur nature, mais aussi de leur distribution géographique et verticale. Les aérosols troposphériques ont des temps de résidence de quelques jours ou semaines, de sorte que la variabilité de leur concentration est directement liée à la proximité des sources. Cependant, les aérosols qui atteignent la stratosphère, majoritairement des sulfates provenant d'éruptions volcaniques majeures et de la transformation chimique des composés soufrés, peuvent y séjourner pendant plusieurs années. Il est impossible pour ces particules de définir une unique échelle de leur temps de résidence, étant donné que les distributions en taille sont variables et que la situation n'est pas égale selon que les particules soient formées dans la stratosphère, ou qu'elles soient transportées jusqu'à celle-ci.

On s'attardera dorénavant à la description de cette classe particulière d'aérosols: ceux qui se situent dans la stratosphère.

## 1.6 Aérosols stratosphériques

Dans la stratosphère on retrouve différentes familles d'aérosols: nuages stratosphériques polaires, aérosols liquides sulfatés, aérosols volcaniques, poussières météoritiques de composition variable et aérosols carbonés. Leur étude diffère de celle des aérosols troposphériques, et les communautés scientifiques dédiées aux uns et aux autres sont bien distinctes. La principale difficulté à l'étude des aérosols stratosphériques repose sur les différents types de particules, ayant chacun des propriétés variables d'absorption ou diffusion du rayonnement. Bien que les éruptions volcaniques du dernier siècle aient été très bien documentées, il demeure un degré de connaissance plus faible en ce qui concerne les aérosols de fond, souvent considérés comme étant principalement des particules liquides sulfatées. Cependant certaines études plus ou moins récentes suggèrent la présence permanente non négligeable de particules solides dans la stratosphère, comme des suies (section 1.6.5) ou des particules météoritiques (section 1.6.6). L'étude des aérosols autres que les volcaniques n'a pu être possible que depuis quelques années; la dernière éruption significative fut celle du volcan Pinatubo en 1991, et les concentrations en aérosols stratosphériques sont actuellement aux niveaux les plus faibles depuis que les satellites contribuent à leur étude.

### 1.6.1 Instruments et techniques de mesure

Deux méthodes globales de caractérisation d'aérosols peuvent être pratiquées avec les différents instruments optiques: les mesures in situ, et les mesures par télédétection.

#### 1.6.1.1 Mesures in situ

Les compteurs de particules, qui nécessitent un prélèvement, peuvent effectuer uniquement des mesures in situ lorsqu'ils sont embarqués à bord d'avions ou de ballons stratosphériques dans le cadre de campagnes d'observations. Ils peuvent faire usage de différents principes de mesure, et généralement évaluent la distribution dimensionnelle des aérosols ou leur quantité en nombre. Le compteur optique (Figure 8) est le plus employé. Le principe de cet instrument consiste à mesurer la lumière diffusée à un angle  $\theta$  par les particules passant dans un faisceau laser; l'intensité de la lumière reçue dans le détecteur permet, d'après la Théorie de Mie, de déterminer la taille des aérosols supérieure à la limite de détection, limite liée à la sensibilité de détection de l'appareil, et qui oscille généralement autour de  $0,3 \mu\text{m}$ .

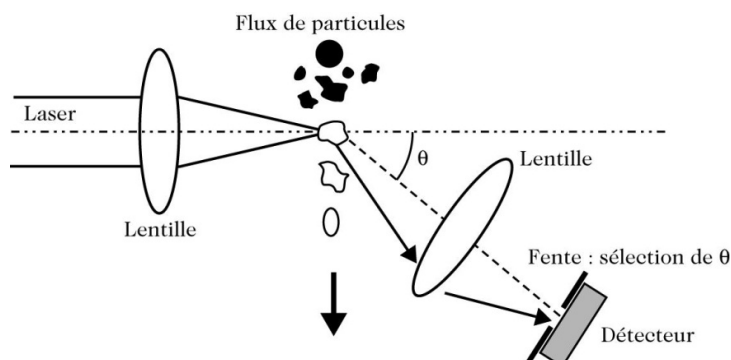


Figure 8. Schéma du principe d'un compteur optique (Delmas et al., 2005).

L'utilisation de la Théorie de Mie et le fait que ces appareils soient calibrés en utilisant des particules sphériques rend les mesures problématiques dans certains cas: pour des aérosols qui possèdent des formes irrégulières, qui absorbent fortement la lumière, ou pour une population de particules dont l'indice de réfraction n'est pas homogène. Le compteur du Laboratoire de Météorologie Dynamique LMD (Ovarlez et Ovarlez, 1995), sa version plus récente appelée STAC (*STratospheric Aerosol Counter*) ou le compteur OPC (*Optical Particles Counter*, Deshler et al., 2006) constituent des exemples de ce type d'instrument.

### 1.6.1.2 Mesures par télédétection

Parmi les mesures à distance, plusieurs stratégies sont possibles pour l'étude de la stratosphère: les mesures peuvent être effectuées depuis le sol, depuis des satellites ou depuis des instruments embarqués à bord de ballons stratosphériques ou d'avions.

Les Lidars (acronyme pour *Light Detection And Ranging*) fonctionnent le plus souvent depuis le sol. L'instrument est constitué d'une source laser et d'un télescope qui collecte la lumière rétrodiffusée par les aérosols; le temps qui s'écoule entre l'émission de l'impulsion laser et le retour du signal diffusé est directement lié à l'altitude à laquelle les particules sont présentes. L'application de cette technique se fait généralement pour les études concernant la basse et moyenne stratosphère, à des altitudes bien inférieures à 30 km, où le signal rétrodiffusé représente essentiellement la contribution (par diffusion de Mie) des aérosols troposphériques, des nuages et éventuellement des PSC. Au-dessus de cette altitude le signal est proche de la limite de détection de l'instrument. La difficulté majeure lors de l'analyse des mesures par télédétection repose sur la connaissance précise de la signature optique des espèces présentes dans l'atmosphère; cela n'étant pas le cas pour les aérosols, les lidars n'en donnent qu'une évaluation qualitative.



Figure 9. Stations du réseau international NDACC (<http://ndacc-lidar.org>).

Il existe actuellement 27 instruments lidar dans le réseau international NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*), dont 23 sont utilisés en routine dans les stations représentées dans la Figure ci-dessus, et 4 sont des systèmes mobiles.

Les radiomètres peuvent être embarqués à bord de satellites ou de ballons stratosphériques. L'instrument MicroRADIBAL (Micro RADIoMètre BALlon, Brogniez et al., 2003) mesure la radiance et la polarisation de la lumière solaire diffusée par les gaz et les aérosols présents dans l'atmosphère. Les diagrammes de réflectance (rapport entre le rayonnement solaire diffusé et le rayonnement solaire incident) sont très sensibles à la nature des particules.

Les photomètres et les spectromètres sont utilisés pour des mesures in situ ou à distance. Cependant, la technique de mesure spectrale la plus employée est la technique d'occultation, une technique de visée au limbe -car le cheminement du rayonnement ne heurte pas la surface terrestre- détaillée dans la section 2.3. Il s'agit de recueillir l'énergie émise par le soleil ou d'autres étoiles lorsque la ligne de visée entre le satellite et la source lumineuse se trouve en dehors de l'atmosphère terrestre. Le rayonnement, atténué par l'absorption ou la diffusion par les constituants chimiques, aérosols et nuages présents dans le domaine spectral, est ensuite enregistré à mesure que la source se couche, ce qui permet d'accéder à une information sur la quantité d'éléments absorbants le long de chaque ligne de visée. Cette technique est particulièrement adaptée à la mesure de couches atmosphériques avec peu d'inhomogénéités horizontales, comme c'est le cas dans la stratosphère.

La première mesure d'aérosols effectuée par satellite fut celle de l'instrument SAM II (*Stratospheric Aerosol Measurement*) à bord du satellite de la NASA Nimbus 7. Depuis, SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*), SAGE II (Chu et al., 1989) et plus récemment SAGE III (Thomason et Taha, 2003) ont fourni des mesures d'extinction d'aérosols d'une à neuf longueurs d'onde. Leurs données ont contribué à l'étude des aérosols de façon importante, et ont servi à établir des climatologies depuis 1978 jusqu'à nos jours (entre autres, voir Thomason et al., 1997a, 1997b, Bauman et al., 2003b, Bingen et al., 2004b, 2004c). Ces instruments utilisent la technique d'occultation solaire (McCormick et al., 1979).

D'autres exemples d'instruments utilisant cette technique de mesure (Tableau 1-2) sont HALOE (*HALogen Occultation Experiment*, Hervig et al., 1996), la série POAM II et III (*Polar Ozone and Aerosol Measurement*, Lucke et al., 1999), CLAES (*Criogenic Limb Array Etalon Spectrometer*, Lambert et al., 1997), ORA (*Occultation Radiometer*, Fussen et al., 1998) ou encore SOFIE (*Solar Occultation For Ice Experiment*, Gordley et al., 2009) à bord d'AIM (*Aeronomy of Ice in the Mesosphere*), le satellite canadien ACE (*Atmospheric Chemistry Experiment*, Bernath et al., 2005) avec les instruments FTS (*Fourier Transform Spectrometer*) et MAESTRO (*Measurement of Aerosol Extinction in the Stratosphere and Troposphere Retrieved by Occultation*), et l'instrument SEE (*Solar EUV Experiment*, Woods et al., 2005) à bord du satellite TIMED (*Thermosphere Ionosphere Mesosphere Energetics and Dynamics*).

Le nombre d'occultations est limité à environ 28 ou 30 lorsque le soleil est utilisé comme source lumineuse. La couverture latitudinale des mesures dépend des paramètres orbitaux, mais varie lentement, ce qui fournit des mesures journalières pour un hémisphère donné dans des bandes de latitude étroites qui se répètent. Par exemple, les instruments SAM II, POAM II et POAM III et SOFIE sont limités à des observations aux hautes latitudes, tandis que HALOE et SAGE II couvrent un large domaine de latitudes en 25 à 40 jours.

Instrument	Couverture géographique	Couverture temporelle
SAM II	64-83°S et 64-83°N	1978-1993
SAGE I	80°S-80°N	1979-1981
SAGE II	80°S-80°N	1984-2005
HALOE	80°S-80°N	1991-2005
CLAES	34°S-80°N et 34°N-80°S	1991-1993
ORA	40°S-40°N	1992-1993
POAM II	63-88°S et 54-71°N	1993-1996
POAM III	63-88°S et 54-71°N	1998-2005
SAGE III	70°S-70°N	2001-2005
SEE	Occultations occasionnelles	2002-opérationnel
ACE	85°S-85°N	2003-opérationnel
SOFIE	65-85°S et 65-85°N	2007-opérationnel

Tableau 1-2. Caractéristiques des principaux instruments satellitaires d'occultation solaire.

La série SAGE effectue des mesures jusqu'à une altitude de plus de 40 km, cependant les niveaux d'extinction sont souvent trop faibles pour évaluer la zone au-dessus de 35 km, et les occultations s'achèvent fréquemment dans la moyenne et haute troposphère du fait de la présence de nuages. Lors de l'éruption de Pinatubo, les profils de SAGE II s'arrêtaient à 27 km, ce qui entraîna absence de données pour une période d'intérêt majeur (les données de CLAES par exemple sont utilisées pour combler ces trous).

Les mesures de HALOE couvrent des altitudes allant de la haute troposphère jusqu'à environ 90 km. La limite de détection de cet instrument pour l'extinction attribuée aux aérosols est de  $5 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$ , et la perte du signal lors d'une occultation se fait pour des extinctions supérieures à  $10^{-2} \text{ km}^{-1}$ . SOFIE, ACE et SEE sont également dédiés à l'étude de la haute atmosphère.

Les étoiles peuvent être utilisées comme sources lumineuses, comme il fut démontré par Hays et Roble (1968). En 1996, UVISI (*Ultraviolet and VISible imagers and spectrometers*) à bord de MSX (*Midcourse Space Experiment*) mène des mesures d'occultation stellaire -bien qu'il n'était pas conçu à cette fin- avec succès dans la période 1996-2001, et fournit des profils d'ozone dans la stratosphère (Yee et al., 2002). Le premier instrument spécifiquement conçu pour des mesures par occultation stellaire est GOMOS (*Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars*); en plus des mesures d'ozone et autres espèces chimiques, GOMOS a servi à élaborer des climatologies d'aérosols (cf. page 61).

Les différentes stratégies d'analyse d'aérosols présentent chacune des avantages et des inconvénients: les mesures in situ ou par télédétection à partir du sol ou lors de campagnes d'observations bénéficient d'une meilleure précision, mais elles sont relativement rares et limitées dans l'espace et dans le temps, et ne permettent donc pas d'appréhender de manière globale les processus chimiques, dynamiques et radiatifs; les instruments à bord de satellites sont les seuls à pouvoir fournir des informations globales et continues des paramètres atmosphériques tels que la pression, la température, les vents, les aérosols et les nuages, mais les conditions d'observation depuis plusieurs centaines de kilomètres rendent difficile l'obtention de résultats fiables pour des altitudes inférieures à une vingtaine de kilomètres. L'approche pluri-instrumentale est d'ailleurs nécessaire compte tenu de la complexité de la mesure des aérosols.



### 1.6.2 Nuages stratosphériques polaires

Les très basses températures atteintes dans les masses d'air isolées par le vortex polaire permettent la formation de nuages stratosphériques polaires (PSC, *Polar Stratospheric Clouds*). Ce terme fut introduit pour la première fois par McCormick et al. (1982) suite aux fortes valeurs d'extinction mesurées par l'instrument SAM II dans l'hémisphère nord, en janvier 1979.

Typiquement, toutes les couches d'aérosols observées hors période volcanique intense, dont le coefficient d'extinction à  $1\mu\text{m}$  excède  $8 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  à une altitude de 3 km ou plus au-dessus de la tropopause locale, sont définies comme étant des PSC. Ces nuages ont une épaisseur moyenne comprise entre 4 et 6 km, bien qu'il en existe de beaucoup plus fins. Ils peuvent être observés typiquement à des altitudes de 16 à 26 km, au nord de  $60^\circ$  de latitude, entre mai et septembre en Antarctique, et entre décembre et mars en Arctique (McCormick et al., 1986, Poole et Pitts, 1994); leur apparition étant corrélée avec les basses températures, ils sont moins fréquents en Arctique, où ils résident à plus hautes latitudes et ont une durée de vie plus courte.

Il existe trois types différents de nuages stratosphériques polaires (e.g. Rivière, 2001) :

- Les nuages de type I sont les plus communs. Leur durée de vie est plus longue, et ils représentent 80 à 90% des observations. On distingue deux sortes de PSC I :
  - Les nuages de type Ia sont des particules solides composées d'acide nitrique et d'eau, dans une proportion de trois molécules d'eau pour une molécule d'acide nitrique  $\text{HNO}_3$ , ( $\text{HNO}_3/3\text{H}_2\text{O}$ ). Ils sont connus sous l'acronyme de NAT (*Nitric Acid Trihydrate*, trihydrate d'acide nitrique), et nécessitent des températures inférieures à 195 K. Leur taille moyenne varie de 1 à 3 micromètres.
  - Les nuages de type Ib ou STS (*Supercooled Ternary Solution*) sont des liquides composés de gouttelettes de solution ternaire d'acide nitrique, acide sulfurique et eau ( $\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4$ ). Ils se forment à des températures inférieures à 192 K. La proportion d'acide sulfurique et d'acide nitrique dépend essentiellement de la température. Leur dimension est inférieure au micromètre.
- Les PSC de type II sont composés de cristaux de glace de taille moyenne comprise entre 1 et 10 micromètres. Ils sont moins fréquents, plus denses, et condensent à des températures plus basses de l'ordre de 188 K, rarement atteintes dans l'Arctique.

Les nuages stratosphériques polaires se forment à partir des centres de nucléation offerts par les molécules d'acide sulfurique, ou par condensation de  $\text{HNO}_3$  stratosphérique (e.g. Toon et al., 2001). Étant donné que  $\text{HNO}_3$  est inerte, les PSC agissent comme puits pour d'autres formes azotées telles que  $\text{NO}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}_5$ , qui convertiraient les espèces réactives chlorées et bromées en formes moins réactives. Un mécanisme de grossissement et de sédimentation des PSC participe à la dénitrification ainsi qu'à la déshydratation de la stratosphère polaire, accentuant ainsi la perte d'ozone. Ces réactions en phase hétérogène, discutées précédemment dans la section 1.4.1 de ce chapitre, font des PSC des composants primordiaux dans les processus de destruction de l'ozone dans les régions polaires, et constituent la raison principale de l'intérêt de ces aérosols.

### 1.6.3 Aérosols liquides sulfatés

Les aérosols stratosphériques participent aux changements de couleur qui ont lieu pendant le crépuscule. Cette particularité pousse Gruner et Kleinert (1927) à suggérer pour la première fois la présence d'une couche d'aérosols non volcaniques dans la stratosphère à partir des observations du rougissement du ciel pendant le crépuscule. La présence de cette couche ne fut confirmée par des observations directes qu'en 1961, lorsque Junge et al. (1961) effectuent des mesures du contenu en aérosols dans la haute troposphère et basse stratosphère à l'aide de compteurs de particules embarqués sous ballons stratosphériques. Ils trouvèrent un nombre de particules par milligramme d'air décroissant avec l'altitude, puis une augmentation notable de la concentration pour les grandes particules, au-dessus de la tropopause. La couche s'avéra avoir une épaisseur de plusieurs kilomètres et fut alors appelée « *the Junge layer* », ou couche de Junge.

On sait aujourd'hui que la couche de Junge est centrée autour de 20 km environ, et qu'elle a une épaisseur de 5 à 10 km, bien qu'elle présente une grande variabilité temporelle de son contenu à cause de l'injection de grandes quantités de particules contenant du soufre lors d'éruptions volcaniques importantes. Le diamètre des particules couvre un large domaine de tailles, allant de 0,1 à 0,5  $\mu\text{m}$ , et leurs concentrations varient entre 0,5 et  $5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-3}$ , valeurs à multiplier par 1-2 en diamètres et  $10$ - $10^3$  en concentration lors de périodes volcaniques (Deshler, 2008). Même si leur composition est souvent considérée comme étant un mélange  $\text{H}_2\text{SO}_4$ - $\text{H}_2\text{O}$  en proportion 75%-25% en masse (Rosen, 1971), la quantité en acide sulfurique en réalité varie entre 60 et 80% (Yue et al., 1994).

Le  $\text{SO}_2$  nécessaire à la formation d'acide sulfurique a des sources anthropiques de plus en plus importantes du fait de l'accroissement de combustion de produits fossiles dans les pays asiatiques (Hofmann et al., 2009). Les éruptions volcaniques (section 1.6.4) constituent la principale source naturelle de ce gaz, et peuvent l'injecter directement dans la stratosphère.

En dehors des périodes de forte activité volcanique on parle d'aérosols de fond, dont l'oxysulfure de carbone (OCS) constitue la principale source (Crutzen, 1976), du fait de sa stabilité dans la troposphère, et de son temps de résidence de l'ordre de l'année. L'OCS provient principalement de l'oxydation du sulfure de diméthyle, (DMS:  $\text{CH}_3\text{SCH}_3$ ), libéré à travers la dégradation microbienne des sources biologiques (phytoplancton marin).

Les précurseurs d'aérosols sulfatés sont plus nombreux, car à  $\text{SO}_2$ , OCS et DMS il faut ajouter le sulfure d'hydrogène ( $\text{H}_2\text{S}$ ) et le sulfure de carbone ( $\text{CS}_2$ ), dont l'oxydation conduit à OCS (Weisenstein et al., 1997, Watts, 2000). Cependant, des études récentes de comparaison entre observations et modèles montrent que le transport de  $\text{SO}_2$  et OCS à travers la tropopause tropicale représente les contributions les plus importantes aux aérosols sulfatés (Weisenstein et Bekki, 2006).

Le processus de conversion gaz-particule dure environ 35 jours (Bluth et al., 1992). Une fois dans la stratosphère, l'oxysulfure de carbone est majoritairement détruit par photolyse, mais réagit également avec l'oxygène atomique (e.g. Zhao et al., 1995) d'après les réactions suivantes :



Le soufre formé réagit rapidement avec le dioxygène (équation 1.27), et le monoxyde de soufre formé dans les réactions précédentes est oxydé principalement via l'équation 1.28 :



Le dioxyde de soufre peut alors être dissocié par le rayonnement UV d'après l'équation 1.29, ou conduire à la formation d'acide sulfurique d'après les réactions suivantes :



L'acide sulfurique est le gaz trace atmosphérique le plus à même de former des noyaux de condensation dans la stratosphère. Le processus de condensation de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  en particules sulfatées peut être représenté par la réaction suivante (Bekki, 1995) :



### 1.6.4 Aérosols volcaniques

Les aérosols volcaniques ont depuis longtemps constitué un centre d'intérêt scientifique. Déjà lors de l'éruption du volcan Krakatoa en 1883, les phénomènes crépusculaires furent associés à la présence d'aérosols volcaniques injectés dans la stratosphère (Kiessling, 1888). À partir de l'éruption de Mt Agung en 1963 (e.g. Voltz, 1964), l'étude de l'impact de l'activité volcanique sur la stratosphère fut effectuée par un plus grand nombre d'auteurs.

Pour qu'une éruption volcanique perturbe de manière significative l'état de la stratosphère, elle doit avoir assez d'énergie pour traverser la tropopause, et elle doit être riche en composés soufrés. Les éruptions les plus violentes injectent directement des particules et des gaz à des altitudes supérieures à 25 km; les aérosols secondaires, formés par l'oxydation de  $\text{SO}_2$  et  $\text{H}_2\text{S}$  -qui contribuent de façon importante aux émissions gazeuses- et  $\text{OCS}$  et  $\text{CS}_2$  -qui contribuent en plus petite proportion- ont des temps de sédimentation qui varient typiquement de 12 à 14 mois. Des particules de cendres contenant du silicium, de taille souvent supérieure à 2 micromètres sont également émises, mais sédimentent plus rapidement.

Outre l'énergie de l'éruption, la localisation géographique du volcan détermine également l'impact des éruptions; celles qui ont lieu aux basses latitudes injectent directement des gaz précurseurs dans le réservoir tropical, favorisant ainsi leur confinement et prolongeant la durée de vie des particules dans la stratosphère. Les épisodes ayant lieu aux latitudes extratropicales ont moins d'impact, car les aérosols sont éliminés avec davantage de facilité par la circulation méridienne.

Le suivi des aérosols après des fortes éruptions volcaniques est important pour l'étude de leur impact climatique et de leur impact sur la chimie stratosphérique par des réactions hétérogènes. La compréhension quant à la distribution de ces aérosols dans la basse stratosphère eut un déclic avec l'ère satellitaire depuis les années 1970, en particulier parce que les trente années suivantes furent caractérisées par une remarquable activité volcanique (Tableau 1-3). Malgré le grand nombre d'éruptions, les études ont été dominées par les deux les plus importantes du dernier siècle: celle du volcan El Chichón au Mexique en 1982, et celle du Pinatubo aux Philippines en 1991.

<b>Volcan</b>	<b>Date</b>
Negra (1°S)	novembre 1979
St. Helens (46°N)	mai 1980
Ulawun (5°S)	octobre 1980
Alaid (51°N)	avril 1981
Pagan (18°N)	mai 1981
Chichón (17°N)	avril 1982
Ruiz (5°N)	novembre 1985
Kelut (8°S)	février 1990
Pinatubo (15°N)	juin 1991
Hudson (46°S)	août 1991

Tableau 1-3. Éruptions volcaniques importantes depuis 1979.

Les données de SAGE couvrent la période de 1979 à 1981, permettant l'étude des aérosols de fond et le suivi de l'éruption du volcan St Helens, ainsi que les perturbations moins importantes dues à l'éruption de Ulawun (Lenoble et al., 1984, Brogniez et Lenoble, 1987).

Une climatologie complète des aérosols volcaniques allant de 1979 à 1991 a été élaborée par Hitchman et al. (1994), en utilisant les épaisseurs optiques à 1,020  $\mu\text{m}$ , mesurées par les instruments SAGE I et II (qui permettent l'échantillonnage des tropiques et latitudes équatoriales), et SAM II, qui est utilisé dans les régions polaires. Le suivi de l'éruption de El Chichón est possible grâce au satellite SAM II, qui opère de 1978 à 1991 aux hautes latitudes. Les données de SAGE II ont permis quant à elles d'analyser premièrement la diminution progressive de ces aérosols -perturbée par des éruptions mineures et par celle de Nevado del Ruiz (Brogniez et Lenoble, 1991)- et deuxièmement la période caractérisée par les éruptions de Kelut et de Pinatubo, et par la faible activité volcanique qui suivit.

Le contenu élevé en aérosols volcaniques constitue des conditions idéales pour l'étude du transport et de la dynamique stratosphérique: Trepte et Hitchman (1992) étudient le transport et l'effet de la QBO sur les aérosols volcaniques et décrivent différentes distributions pour les phases est et ouest, ainsi que la présence d'un réservoir tropical. Une étude plus détaillée est décrite dans Grant et al. (1996) dans le cas de l'éruption du Pinatubo. Dans une étude postérieure, Trepte et al. (1994) décrivent la distribution latitudinale des aérosols volcaniques avec deux zones de valeurs maximales d'épaisseur optique: une qui correspond au réservoir tropical; l'autre, située aux hautes latitudes, résulte du transport des aérosols. Les valeurs d'épaisseurs optiques sont minimales entre 15° et 45° de latitude.

### 1.6.4.1 L'éruption du Pinatubo

L'éruption volcanique la plus documentée par des observations précises et fiables grâce à la disponibilité d'instruments lidar, photomètres, compteurs à bord de ballons et d'avions et instruments à bord de satellites est celle de Pinatubo (15°N), situé à l'île de Luzón, aux Philippines. Le volcan produit une série d'éruptions en Juin 1991, dont celle du 15 Juin, qui a été considérée comme la plus puissante du XX<sup>ème</sup> siècle.

La quantité maximale de SO<sub>2</sub> atteinte est estimée à 30 Mt (McCormick et al., 1995). Les observations (Russell et al., 1996) montrent qu'il faut 3 mois pour atteindre le pic de concentration. Bluth et al. (1992) suivent avec l'instrument TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) la dispersion du nuage volcanique qui traverse l'équateur pour se répandre jusqu'à des latitudes de 10°S dans les deux premières semaines suivant l'éruption, et qui fait le tour du globe en approximativement 20 jours. McCormick et Veiga (1992) analysent l'évolution du nuage d'aérosols dans les mois suivant l'éruption. Pendant les mois de juin et juillet les niveaux plus forts d'extinction mesurés par SAGE II montrent la répartition entre 30°N et 10°S, et les altitudes atteignent 29 km aux tropiques. Les aérosols sont ensuite répartis pour atteindre 70°N et 50°S en août. Deux ans et demi après l'éruption, la quantité d'aérosols avait diminué à environ 5 Mt. La Figure 10 montre l'épaisseur optique intégrée (section 2.2) mesurée par SAGE II pour deux périodes après l'éruption: les valeurs entre le 15 et le 29 juillet 1991 montrent le confinement et les augmentations de deux ordres de magnitude; les valeurs entre le 15 août et le 24 septembre 1993 montrent la dispersion des aérosols et le retour graduel aux valeurs précédant l'éruption, bien qu'à cette date les valeurs soient encore dominées par les aérosols volcaniques.

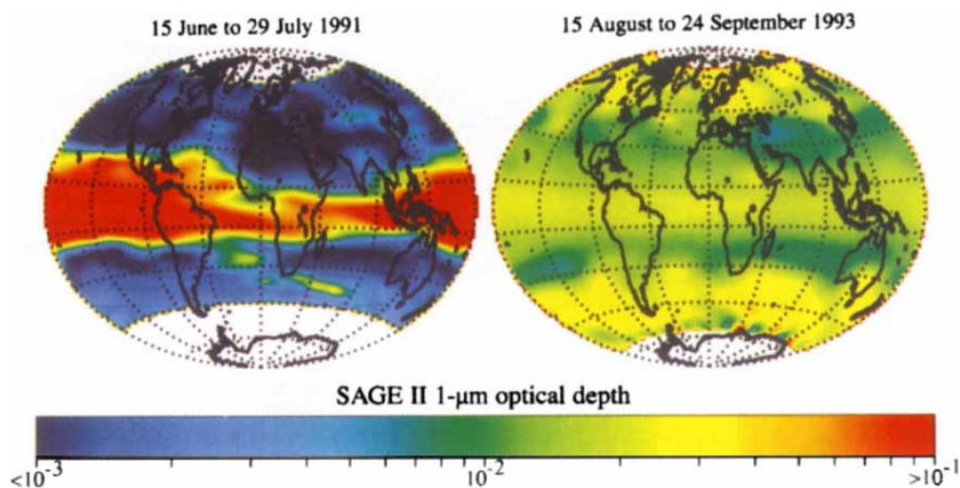


Figure 10. Épaisseur optique mesurée par SAGE II juste après (gauche) et deux ans après (droite) l'éruption de Mt Pinatubo, d'après McCormick et al., 1995.

Les observations satellitaires montrent qu'il a fallu six ans pour que les concentrations en aérosols stratosphériques retournent aux valeurs antérieures à l'éruption de 1991 (Thomason et al., 1997a et 1997b). Cependant, il est généralement admis que seulement depuis l'année 1999 les concentrations d'aérosols sont libres de l'influence volcanique (SPARC, 2006).

Les variations spectrales des coefficients d'extinction peuvent être interprétées pour estimer les distributions en taille des aérosols (Brogniez et Lenoble, 1988). Ainsi, Brogniez et al. (1996) déduisent d'après les variations spectrales mesurées par SAGE II que les aérosols une année après l'éruption de Pinatubo sont constitués de particules plus grandes -de diamètres effectifs compris entre 0,50 et 0,58  $\mu\text{m}$  à 18 km et 0,45 et 0,52  $\mu\text{m}$  à 20 km-, et caractérisées par une faible dépendance spectrale, tandis que deux ans après l'éruption l'extinction présente une augmentation vers les longueurs d'onde plus courtes, ce qui indiquerait des plus petites particules -entre 0,39 et 0,42  $\mu\text{m}$  à 18 km et 0,31 et 0,35  $\mu\text{m}$  à 20 km-, bien que la taille moyenne soit supérieure à celle des aérosols de fond dans tous les cas. Ceci est confirmé par les mesures de réflectance et polarisation de l'instrument sous ballon Radibal lors de campagnes de mesures en juin 1992 et mai 1993.

D'autres instruments ont également été utilisés pour l'étude des aérosols volcaniques. Par exemple, Stevermer et al. (2000) utilisent les données de SAGE II ainsi que les données de photomètres et de différents lidars pour construire une climatologie de 1953 à 1997. Des études avec des instruments au sol et sous ballons ont contribué à une compréhension des effets optiques et de l'évolution des particules; Deshler et al. (2003) rassemblent 30 ans de données de profils verticaux d'aérosols par des mesures in situ avec des compteurs d'aérosols au Wyoming (41°N). Cependant, certaines propriétés des aérosols ne sont pas bien quantifiées, et l'amélioration des données constitue un important domaine de recherche; dans ce cadre, les estimations de paramètres décrivant la taille des particules ont été menées par Randall et al. (2001), ou Bauman et al. (2003a).

Dans une série de travaux, Bingen et al. (2003, 2004a, 2004b, 2004c) décrivent la période 1984-2000 à partir des données de SAGE II inversées par une nouvelle méthode initialement appliquée aux données de ORA (Fussen et al., 2001a, 2001b). Dans le cas de SAGE II, cette méthode permet d'estimer les paramètres relatifs à la distribution en taille des aérosols en supposant une distribution log-normale monomodale. La climatologie dont font l'objet ces travaux concerne principalement le suivi de l'éruption de Pinatubo et de la longue période de retour aux conditions d'aérosols de fond. D'autres influences saisonnières sont aussi étudiées.

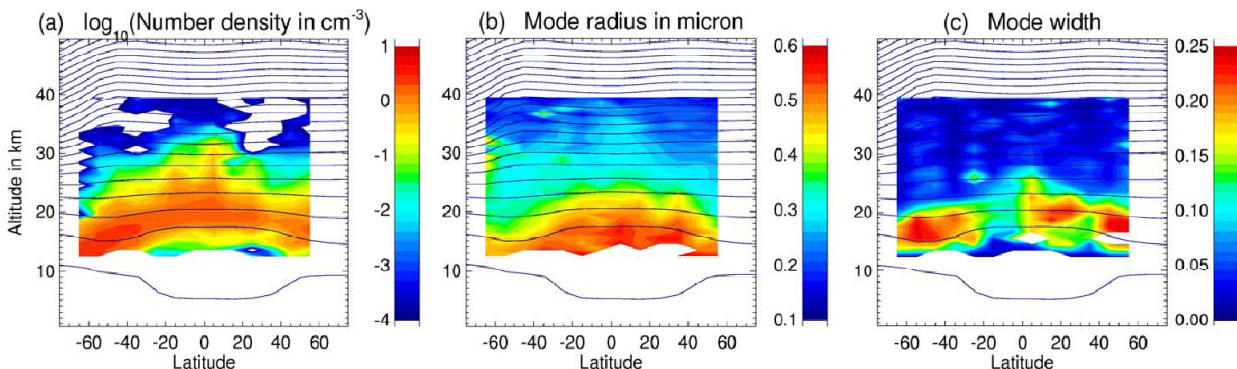


Figure 11. Logarithme de la concentration (a), rayon moyen (b) et largeur de la distribution log-normale (c) en septembre 1993, d'après SAGE II (Bingen et al., 2004b).

La structure des contours altitude-latitude (Figure 11) montre le transport d'aérosols depuis la tropopause vers la stratosphère, et la présence du réservoir tropical déjà mentionné, en

septembre 1993, période caractérisée par un contenu moyen en aérosols volcaniques. Le paramètre N (concentration de particules,  $\text{cm}^{-3}$ ) présente une dissymétrie qui indique un transport plus important vers l'Arctique dans la basse stratosphère. Au-dessus de 25 km, la variabilité latitudinale de tous les paramètres se rend moins évidente.

La Figure 12 montre l'influence de la phase de l'oscillation quasi-biennale sur le paramètre N, pour les mois de juin 1997 (phase ouest) et juin 1998 (phase est). Ces périodes sont caractérisées par un contenu global faible en aérosols volcaniques. La phase ouest présente davantage de transport vers les pôles, tandis que la phase est présente une forte ascendance, en accord avec les observations de Hitchman et al. (1994). L'évolution de la concentration à 17,5 km dans la période post-Pinatubo est présentée dans la Figure 13.

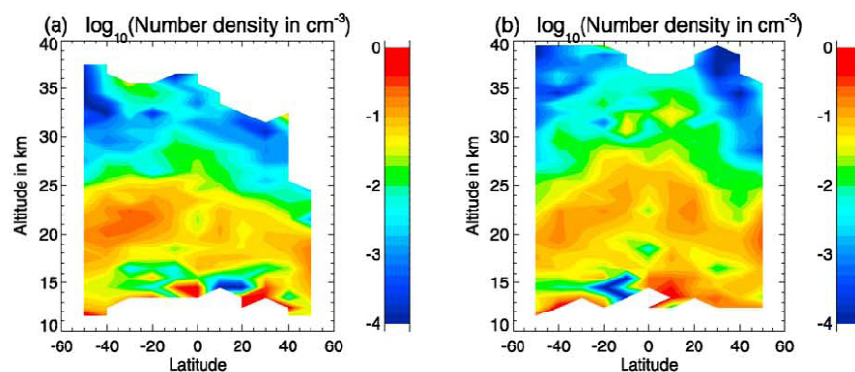


Figure 12. Logarithme de la concentration en juin 1997 (phase *westerly*, a) et en juin 1998 (phase *easterly*, b) d'après SAGE II (Bingen et al., 2004b).

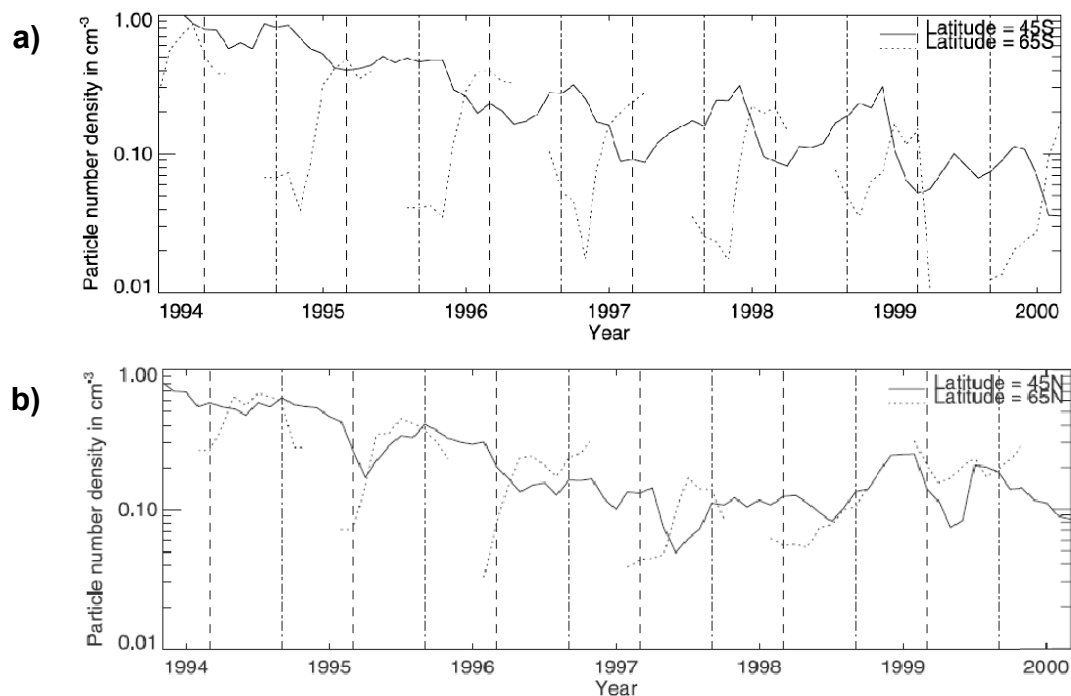


Figure 13. Évolution temporelle de la concentration de particules à 17,5 km d'altitude, mesurée par SAGE II de novembre 1993 à mars 2000 dans l'hémisphère sud (a) et nord (b), entre 40° et 50° de latitude (trait plein) et 60° et 70° (pointillés). Les lignes verticales correspondent aux mois de mars (- - -) et de septembre (- · - · -). Bingen et al., 2004.



Dans l'hémisphère sud (Figure 13a), en automne et en hiver  $N$  augmente aux moyennes latitudes et simultanément diminue fortement au-delà de  $60^\circ$  S. Au printemps et en été,  $N$  décroît considérablement autour de  $40$ - $50^\circ$  latitude, mais augmente aux latitudes polaires. L'effet observé est similaire dans l'hémisphère boréal (Figure 13b), bien qu'il soit moins notable et plus irrégulier.

Ces cycles saisonniers résultent du transport des aérosols vers les pôles, qui est fortement inhibé par la barrière dynamique que forme le vortex polaire vers  $60^\circ$  de latitude, ce qui explique la diminution de  $N$  aux hautes latitudes, et la dissymétrie observée dans la Figure 11a. Le transport provoque également une subsidence des particules juste au-dessus de la tropopause; l'accumulation des particules explique l'augmentation observée entre  $40^\circ$  et  $50^\circ$  de latitude en hiver. Au printemps, la rupture du vortex polaire permet à nouveau le transport des espèces chimiques et des aérosols vers les pôles, et  $N$  décroît considérablement aux moyennes latitudes, tandis qu'aux latitudes polaires se produit une augmentation. Les variations saisonnières concernent essentiellement la basse stratosphère, et ne sont pas observées au-dessus de  $22$  km.

### 1.6.4.2 Effets des aérosols volcaniques

Les éruptions volcaniques injectent d'énormes quantités de gaz et particules directement dans la stratosphère. Parmi les gaz,  $H_2O$ ,  $N_2$  et  $CO_2$  sont les plus abondants, mais les émissions sont faibles par rapport à leur concentration atmosphérique, et ne modifient pas leur effet de serre. Le bilan radiatif est cependant modifié par l'injection d'espèces soufrées, principalement  $SO_2$  et  $H_2S$ , qui forment des particules d'aérosols, augmentent l'albédo et conduisent à un refroidissement de la surface terrestre (Dutton et Christy, 1992). Le forçage radiatif a été estimé à  $-4 \text{ Wm}^{-2}$  au début de l'année 1992, avec une décroissance de  $-0,1 \text{ Wm}^{-2}$  pendant quatre ans (McCormick et al., 1995). Les particules jouent aussi un rôle crucial dans la nucléation des cirrus près de la tropopause, affectant le bilan radiatif de manière indirecte.

Un autre effet climatique est la réduction des précipitations aux tropiques une ou deux années après une forte éruption (Robock, 2000), car la diminution de radiation solaire peut réduire considérablement l'évaporation. La condensation en acide sulfurique consomme aussi des molécules d'eau et des radicaux OH, et peut contribuer à la déshydratation de la stratosphère (Bekki, 1995). Les aérosols volcaniques sont également à l'origine d'un réchauffement de la stratosphère (Labitzke et McCormick, 1992), car ils absorbent une partie du rayonnement infrarouge solaire et tellurique. Ces modifications produisent une altération de la circulation stratosphérique du fait de l'introduction de gradients de température horizontaux et verticaux. Le réchauffement de la stratosphère tropicale conduit à un vortex polaire plus froid notamment dans l'hémisphère nord, ce qui augmente la probabilité de formation de nuages stratosphériques polaires et de ce fait la destruction d'ozone stratosphérique. Mais les particules d'aérosol peuvent modifier la chimie stratosphérique -particulièrement la chimie de l'ozone- à toutes les latitudes, car les réactions de formation et destruction de  $O_3$  dépendent du flux de rayonnement UV, de la température, et de la présence de surfaces qui peuvent servir de support aux réactions en phase hétérogène, et tous ces paramètres sont modifiés par la présence d'aérosols volcaniques. Des conséquences notables dans la stratosphère tropicale suite à l'éruption de Pinatubo sont décrites par Bekki et al. (1993) ou Bekki et Pyle (1994).



### 1.6.5 Aérosols carbonés

Plusieurs sortes d'aérosols carbonés sont présentes dans l'atmosphère. Le carbone organique (*organic carbon, OC*) est composé d'une mixture de composants chimiques issus de l'oxydation des composés organiques volatiles rejetés par la végétation. Le terme *suie* s'applique aux aérosols carbonés produits par une combustion incomplète, et fait référence à deux types de particules: le carbone organique qui résulte des injections produites par les feux de biomasse, et le noir de carbone (*black carbon, BC*), appelé aussi carbone élémentaire (EC) ou encore carbone réfractaire en raison de sa couleur et de sa résistance aux hautes températures. Les suies sont composées de chaînes d'agrégats de sphères d'un diamètre d'environ 20 nm (Pueschel et al., 1992), avec différents degrés d'embranchements et compacité (Figure).

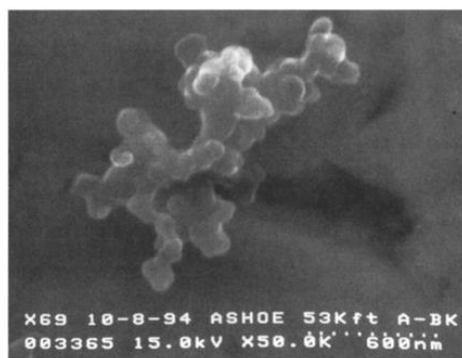


Figure 14. Image de microscopie électronique montrant la morphologie complexe des agrégats de suies collectés dans la stratosphère (Pueschel et al., 1997).

Les suies sont donc un type d'aérosol primaire émis directement par tous les processus de combustion ayant lieu à la surface terrestre (ou dans l'atmosphère dans le cas de particules issues du trafic aérien ou d'origine météoritique). Chuan et Woods (1984) collectent pour la première fois des particules carbonées dans la stratosphère, entre 18 et 21 km, lors de vols à bord d'avions effectués entre 1979 et 1983 couvrant les latitudes de 23°N à 68°N. Les suies sont présentes en faibles quantités mais pour plus de la moitié des échantillons. Les auteurs proposent pour ces particules des sources météoritiques. Pueschel et al. (1992) et Blake et Kato (1995) étudient les particules collectées dans la stratosphère par une technique d'impact sur différents supports à bord d'avions. L'analyse par microscopie électronique permet d'identifier les suies grâce à leurs tailles et morphologies caractéristiques. Les mesures effectuées après l'éruption de Pinatubo ne montrent pas d'augmentation significative des quantités de carbone noir; ainsi, il est démontré que les éruptions volcaniques ne constituent pas une source importante de ce type d'aérosol. Cependant le grand nombre de particules collectées par Blake et Kato aux altitudes de croisière du trafic aérien (autour de 10 ou 11 km d'altitude), et aux latitudes les plus fréquentes pour les vols (entre 40°N et 60°N) font alors de la navigation aérienne commerciale le candidat le plus probable comme source principale de suies dans la stratosphère, bien que cette hypothèse ait été remise en cause quelques années plus tard (voir Baumgardner et al. 2004, cf. page 48). Selon les auteurs, les suies collectées vers 20 km pourraient provenir de l'ascendance des particules émises aux plus basses altitudes.

Les moyens de transport des suies vers les altitudes supérieures dans la stratosphère sont d'abord mal connus. Rohatschek (1996) démontre de façon théorique qu'un certain type de photophorèse, appelé gravito-photophorèse, peut contribuer à la lévitation de particules absorbantes lorsqu'elles sont soumises au rayonnement solaire. Ainsi, l'irradiation pourrait produire un mouvement ascendant et prolonger le temps de résidence de certains types d'aérosols, notamment ceux ayant des géométries irrégulières comme les suies. Les calculs montrent un intervalle de pressions correspondant à des altitudes entre 2 et 70 km (limite supérieure qui était considérée précédemment comme impossible à atteindre par des aérosols d'origine terrestre) dans lequel le mécanisme est particulièrement efficace. Pueschel et al. (2000) appliquent les calculs à des suies collectées dans les couloirs de trafic aérien entre 10 et 12 km. Leurs valeurs mènent à une concentration globale de suies d'environ  $10^{-4} \text{ cm}^{-3}$  dans la stratosphère, avec les agrégats de plus grande taille ayant un diamètre supérieur à  $0,5 \mu\text{m}$ . La stratosphère est particulièrement sensible à la présence de ces suies, car elles peuvent y séjourner pendant des mois ou des années, contrairement aux temps de vie troposphériques qui sont de l'ordre de jours ou semaines. Leur influence sur la chimie de l'ozone se traduit par des réactions en phase hétérogène qui affectent les répartitions des  $\text{NO}_x$  entre des formes réactives et des espèces réservoir (Bekki, 1997, Strawa et al., 1999), et par leur capacité à concentrer un certain nombre d'espèces polluantes à leur surface.

Contrairement aux autres types d'aérosols atmosphériques, les suies présentent des capacités d'absorption importantes, proportionnelles à la concentration en carbone noir des particules. Dans le but d'isoler leur signature de celle des aérosols de fond, des mesures en laboratoire de l'extinction et de la polarisation produites par différents types de suies sont effectuées par Renard et al. (2001a). La dépendance spectrale des coefficients d'extinction est étudiée dans le domaine visible à différentes longueurs d'onde, montrant peu de dépendance spectrale. Bergstrom et al. (2002) montrent une faible décroissance avec la longueur d'onde. Ce comportement permet de différencier les suies des aérosols de fond, qui présentent une forte dépendance spectrale avec davantage d'absorbance vers le bleu (Stevermer et al., 2000, Bingen et Fussen, 2000). Les mesures effectuées en mars 2004 avec l'instrument sous ballon MicroRADIBAL confirment la présence de suies jusqu'à des altitudes de 27 km, dont la concentration relative diminue progressivement avec l'altitude, alors que la concentration relative de particules sulfatées augmente dans ce sens (Renard et al., 2008b).

### 1.6.5.1 Aérosols issus des feux de biomasse

Il est généralement admis que seulement les éruptions volcaniques peuvent provoquer l'injection directe de matériel troposphérique dans la stratosphère. Néanmoins, dans les dernières années, différents moyens de transport -autres que la convection profonde, qui permet aux particules d'accéder jusqu'à la basse stratosphère depuis les niveaux plus bas de l'atmosphère- ont été étudiés. La pyro-convection, combinée aux grands feux de biomasse, peut représenter un important mécanisme qui contribuerait à l'échange troposphère-stratosphère (Fromm et al., 2005). Ce mécanisme justifie une nouvelle provenance des suies stratosphériques, dont la quantité paraît être trop importante pour que leurs sources soient uniquement les émissions par le trafic aérien. Les particules seraient ensuite hissées jusqu'à la

moyenne stratosphère par l'effet de gravito-photophorèse. Cependant, les suies provenant de feux de biomasse possèdent un contenu plus important en carbone organique (avec des noyaux de condensation en abondance) qu'en carbone noir. Ainsi, il a parfois été supposé (Blake et Kato, 1995) qu'elles ne résideraient pas longtemps dans l'atmosphère.

Penner et al. (1992) estiment la quantité de suies provenant de feux de biomasse à 100 Tg, pour environ 70% émises aux latitudes tropicales. La détection dans la basse stratosphère d'aérosols issus de grands feux par des mesures in situ ou à distance est décrite dans différents travaux. Pendant l'été de 1998, une étrange couche d'aérosols est détectée à Kiruna en Suède par des mesures LIDAR (Siebert et al., 2000). Une augmentation de l'extinction des aérosols jusqu'à 5 km au-dessus de la tropopause est enregistrée par POAM III, et corroborée par SAGE II et TOMS entre mai et octobre 1998 (Fromm et al. 2000). Les auteurs attribuent ces augmentations à des épisodes de feux de forêts boréales particulièrement intenses au Canada. Les résultats suggèrent l'intrusion d'aérosols dans la basse stratosphère de façon répétée au cours de l'été 1998, particulièrement pendant le mois d'août. L'augmentation persiste pendant au moins 3 mois, suivi d'une période de deux mois de décroissance graduelle. Plusieurs incendies au Canada pendant l'été de l'année 2003 forment des d'aérosols de forts coefficients d'extinction dans la basse stratosphère, qui sont mesurés par SAGE III (Tétard, 2008). L'intrusion dans la stratosphère d'air enrichi en monoxyde de carbone jusqu'à des altitudes de 15,8 km est attribuée aux feux de forêts d'Amérique du Nord en juillet 2002 (Jost et al., 2004). Les concentrations de particules sont 5 fois plus importantes que celles correspondant aux aérosols de fond. Aussi à cause des fortes concentrations en CO dans la haute troposphère, Nedelec et al. (2005) identifient l'air au-dessus d'Asie et d'Europe provenant des feux de Sibérie en 2003. Les mesures de fluorescence par les composants organiques des suies provenant de feux de biomasse confirment l'ascendance des aérosols jusqu'à la basse stratosphère (Immler et al., 2005), et constituent une nouvelle technique pour caractériser les aérosols à l'aide d'instruments lidar.

### 1.6.6 Poussières interplanétaires

Depuis que Mossop (1963) suggère la présence de particules d'origine extra-terrestre parmi les aérosols stratosphériques, des mesures in situ ont confirmé leur présence; par exemple, l'analyse entre 5 et 19 km avec un spectromètre de masse embarqué en avion révèle des compositions chimiques très variées, avec plus de 45 éléments différents et des quantités notables de mercure dans la plupart des particules (Murphy et al., 1998). L'origine météoritique des aérosols contenant du fer est mise en évidence par le fait qu'ils sont présents en plus grandes quantités dans la stratosphère que dans la troposphère, et par le fait qu'ils contiennent d'autres éléments (Mg, Na, Al, K, Ca, Cr, Ni) dans des proportions qui sont en accord avec la composition de la matière météoritique.

La plupart de la matière météoritique entrant dans l'atmosphère subit une ablation à des altitudes supérieures à 75 km, et constitue une source importante de métaux dans la haute atmosphère (Turco et al., 1982). La matière ablatée peut éventuellement se recombinaison par condensation et coagulation dans la mésosphère pour former des particules de fumée (*smoke particles*) de taille nanométrique. Des poussières de taille supérieure appelées micrométéorites ont des diamètres allant de quelques micromètres à environ 500  $\mu\text{m}$ .

D'après les études de modélisation de Hunten et al. (1980) et Turco et al. (1981), les débris météoritiques contribueraient à la population d'aérosols de grande taille (plus de 1  $\mu\text{m}$ ) de façon importante dans l'ensemble de la stratosphère, et pourraient être la principale composante de particules de taille inférieure à 0,01  $\mu\text{m}$  en-dessous de 20 km. Les particules de fumée météoritique contribueraient quant à elles aux petites tailles, et seraient les aérosols dominants dans la haute stratosphère. Pour la totalité des particules météoritiques dans l'ensemble de la stratosphère, elles représenteraient moins de 10% de la masse totale d'aérosols. Cependant à ce jour ces affirmations n'ont pu être vérifiées à cause du manque d'observations.

La présence de micrométéorites dans la basse stratosphère fut détectée par différents auteurs et diverses stratégies. Cziczo et al. (2001) montrent d'après leur étude que typiquement la moitié des particules stratosphériques contiennent du fer d'origine météoritique dans des proportions allant de 0,5 à 1% en masse, ce qui requiert l'entrée dans l'atmosphère de 20 à 100 tonnes de matériel extra-terrestre par jour. D'après les auteurs, cet apport représenterait 0,3 à 1,7% du contenu total en soufre des aérosols présents dans la stratosphère, et la matière météoritique contribuerait ainsi à la formation de la couche de Junge.

Les mesures par instrument sous ballon stratosphérique (Renard et al., 2005) montrent des variations de l'extinction autour de 640 nm, qui sont interprétées comme des signaux produits par des particules de grande taille (quelques centaines de nanomètre), d'origine extraterrestre. Une étude -cette fois à partir de données satellitaires- menée par Klekociuk et al. (2005) consiste à suivre l'évolution d'un grand météorite détecté en Antarctique le 3 septembre 2004, à une altitude de 75 km; quelques heures après l'observation, des fines couches de particules non sphériques de taille micrométrique sont détectées par des lidars au sol. Enfin, les premières observations satellitaires de poussières météoritiques par l'instrument SOFIE montrent une couche de particules de 35 à 85 km d'altitude, régies par un cycle saisonnier qui réduit fortement les concentrations durant l'été polaire du fait de la circulation méridienne (Hervig et al., 2009).

### 1.6.7 Distribution des aérosols stratosphériques

Le cycle de vie des aérosols de fond est relativement bien connu (Figure 15 page 49). En dehors des périodes volcaniques, les gaz précurseurs atteignent la stratosphère principalement à travers la tropopause tropicale, et donnent lieu par nucléation homogène à la formation de petites particules qui grossissent par des processus de condensation et coagulation. Une répartition rapide des aérosols a lieu grâce au vent zonal, mais le transport méridien est limité par les courants jets, ce qui provoque une accumulation d'aérosols dans la zone intertropicale entre 15° et 30° de latitude.

Leur transport est lent, mais particulièrement efficace en théorie lors de la phase ouest de la QBO. Les aérosols ainsi que leurs précurseurs migrent vers les moyennes latitudes et les pôles, transportés par la circulation de Brewer-Dobson, et descendent le long des surfaces isentropes. Des processus d'élimination ont lieu aux moyennes et hautes latitudes. La formation de nuages stratosphériques polaires produit une élimination par sédimentation des aérosols.

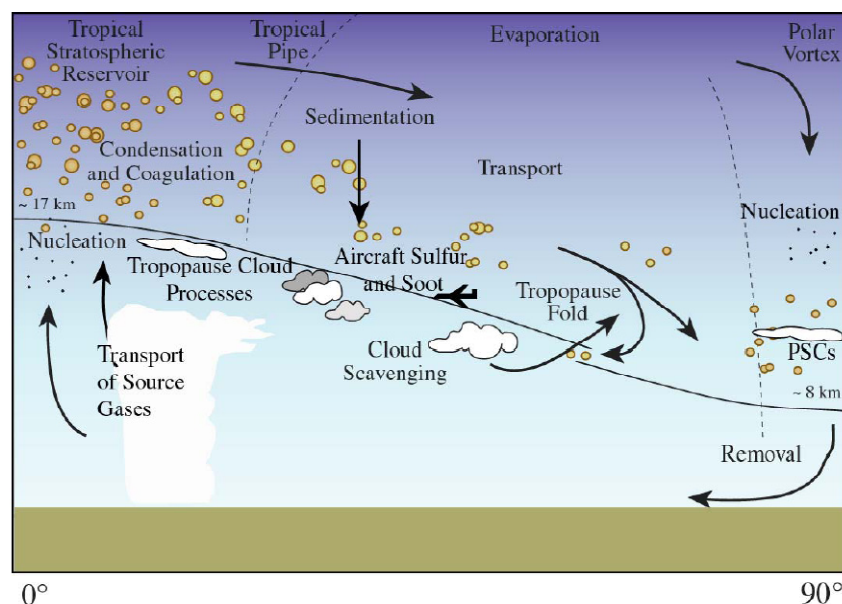


Figure 15. Cycle de vie des aérosols stratosphériques, d'après Hamill et al., 1997.

Les mesures des instruments sous ballon MicroRADIBAL et SALOMON, et du compteur de particules STAC révèlent la présence d'aérosols pour des périodes spécifiques à différentes saisons entre 2003 et 2006 (Renard et al., 2008b). Cette étude permet aux auteurs de proposer une répartition verticale des différents types de particules (Figure 16): dans la basse stratosphère, les aérosols liquides sulfatés dominent et forment la couche de Junge, mais les suies seraient également présentes; dans la moyenne et haute stratosphère on retrouve les poussières interplanétaires et grains résultant de la désintégration météoritique.

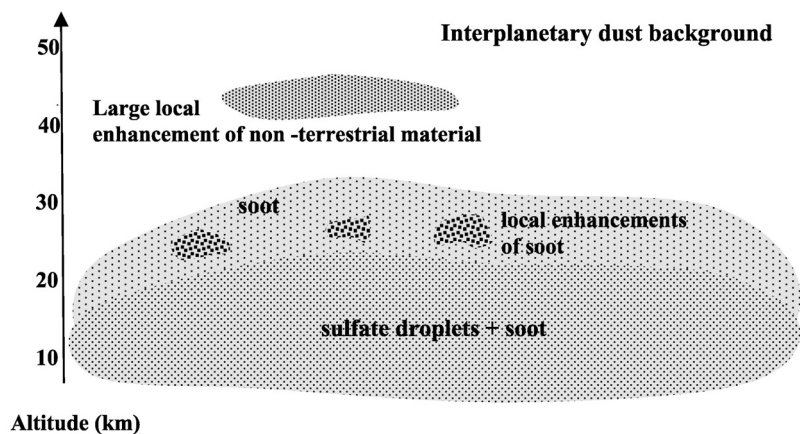


Figure 16. Répartition verticale des différents types d'aérosols stratosphériques proposée par Renard et al. (2008b) à partir des mesures des instruments sous ballon stratosphérique MicroRADIBAL et SALOMON, et du compteur de particules STAC, pour différentes périodes entre 2003 et 2006.

Bien que les mesures effectuées dans la basse stratosphère soient nombreuses (Bingen et al., 2006) et montrent la présence de la relativement bien connue couche de Junge et de suies en quantités variables, la contribution totale de ces dernières demeure incertaine. Il en est de même pour les particules d'origine interplanétaire, qui seraient présentes à de plus hautes altitudes. D'une manière générale, les aérosols sont difficiles à quantifier précisément par des

techniques de mesure optiques, car les paramètres qui les caractérisent sont nombreux: l'efficacité des aérosols à diffuser la lumière dépend de leur taille, de leur indice de réfraction et de la longueur d'onde considérée. Les particules liquides sont détectées par l'analyse de la lumière qu'elles diffusent, que ce soit en extinction, en radiance ou en polarisation; les suies et les poussières interplanétaires viennent compliquer l'analyse des mesures optiques. Des études dans la moyenne et haute stratosphère sont donc nécessaires dans le but de clarifier la distribution des différents types d'aérosols.

---

# Chapitre 2

## L'instrument GOMOS

La plateforme ENVISAT (*ENVironmental SATellite*, Figure 17) de l'Agence Spatiale Européenne (ESA ou ESA, *European Space Agency*) fut mise en orbite le 1<sup>er</sup> mars 2002 par Ariane 5 depuis le centre spatial de Kourou, en Guyane Française. Ses dimensions de 26×10×5 mètres pour 8,5 tonnes en font le plus gros satellite scientifique d'observation de la Terre jamais conçu (<http://envisat.esa.int/>). ENVISAT est placée en orbite polaire héliosynchrone à 785 km d'altitude, avec une période de 100,5 minutes, et effectue un cycle de 501 orbites en 35 jours. L'exigence scientifique avant le lancement était l'utilisation des divers instruments pendant les quatre années de la mission. Après plusieurs prolongations, au cours de l'année 2010 la décision de poursuivre son utilisation jusqu'en 2013 a été prise. L'orbite est modifiée en octobre 2010 pour limiter la consommation d'hydrazine, et son inclinaison n'est plus contrôlée.



Figure 17. Maquette de la station ENVISAT au Living Planet Symposium en Norvège, juillet 2010.

ENVISAT a pour objectif d'assurer la continuité des missions des satellites ERS1 et ERS2 (*European Remote Sensing Satellite*), tout en apportant des observations additionnelles pour l'étude de l'environnement. La plateforme embarque dix instruments qui concernent diverses disciplines scientifiques; l'étude de la chimie atmosphérique est assurée avec les instruments SCIAMACHY (*Scanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CartographY*), MIPAS (*Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding*) et GOMOS.

## 2.1 Description générale de l'instrument GOMOS

GOMOS (*Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars*) est le premier instrument spatial dédié à l'étude de l'atmosphère terrestre conçu pour se servir de la technique d'occultation stellaire (Bertaux et al., 2004). L'objectif primordial à son lancement est l'étude de la distribution verticale globale de l'ozone de la haute troposphère à la haute mésosphère. Il est un des successeurs de GOME (*Global Ozone Measurement Experiment*), premier instrument européen de surveillance de l'ozone qui se trouvait à bord de ERS-1.



Figure 18. Vue d'artiste de l'instrument GOMOS et de ses composants (Ratier et al., 1999).

L'instrument pèse 163 kg pour une consommation électrique de 146 W. Il est équipé d'un télescope de 20×30 cm (Figure 18), et d'un pointeur stellaire qui permet de repérer les différentes étoiles jusqu'à une magnitude de 5, capable d'opérer de jour comme de nuit. Les détecteurs sont des dispositifs à transfert de charge ou CCD (*charge coupled devices*). Quatre spectromètres -deux dans l'UV-visible, deux dans le proche IR- opèrent avec des temps d'intégration de 0,5 secondes (Tableau 2-1). Les intervalles de longueurs d'onde permettent la mesure de O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, de la diffusion Rayleigh et de l'extinction des aérosols dans l'UV-visible, et de O<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O dans l'IR. Deux photomètres dans les bandes spectrales 644-705 nm et 466-528 nm sont utilisés pour corriger les perturbations dues aux effets de scintillation (section 3.1.1), et pour déterminer (en théorie) les profils verticaux de température.

Canal	Domaine spectral	Résolution spectrale
UV-Vis	250-675 nm	1.2 nm
IR1	756-775 nm	0.2 nm
IR2	926-952 nm	0.2 nm

Tableau 2-1. Résumé des paramètres spectraux (GOMOS Product Handbook, 2007).



## 2.2 Optique atmosphérique

Le rayonnement électromagnétique est un vecteur important de transfert d'énergie dans l'atmosphère. Les méthodes optiques employées pour la mesure des aérosols sont fondées sur les lois d'absorption et de diffusion de la lumière par les composants atmosphériques, qui permettent d'interpréter les observations satellitaires. L'action conjuguée de la diffusion et de l'absorption est appelée extinction (section 2.2.3). Par sa technique de mesure (cf. page 56), GOMOS évalue la présence de particules et de gaz responsables de la réduction du signal enregistré.

### 2.2.1 Spectroscopie d'absorption

La spectroscopie atmosphérique fait usage de la Loi de Beer-Lambert :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp [-\sigma(\lambda) c L] \quad (2.1)$$

où  $I_0(\lambda)$  et  $I(\lambda)$  sont les intensités du rayonnement avant et après le passage dans un milieu d'épaisseur  $L$ ,  $c$  est la concentration de l'espèce mesurée, et  $\sigma(\lambda)$  est la section efficace d'absorption ( $\text{cm}^2 \cdot \text{molécule}^{-1}$ ) à la longueur d'onde  $\lambda$ . Celle-ci est reliée à la probabilité d'une molécule à interagir par absorption à une longueur d'onde donnée.

La concentration pourra être calculée d'après la transmission mesurée,  $T(\lambda)$  :

$$T(\lambda) = \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \quad (2.2)$$

L'application de la loi de Beer-Lambert à l'atmosphère implique la prise en considération de la présence des aérosols, et d'une contribution de diffusion.

Pour quantifier l'absorption par les aérosols, on définit un facteur d'absorption,  $Q_{abs}$ , comme le rapport entre la section efficace d'absorption et la section géométrique de la particule,  $s_g$  :

$$Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{s_g} \quad (2.3)$$

L'efficacité à absorber d'un élément présent dans une couche atmosphérique est appelée coefficient d'absorption,  $\alpha_{abs}$  ( $\text{cm}^{-1}$ ), et exprime la section efficace par unité de volume. Pour une population de particules de distribution en taille  $n(r)$  :

$$\alpha_{abs} = \int_0^\infty \pi r^2 Q_{abs}(r) n(r) dr \quad (2.4)$$

La capacité d'une particule à absorber un rayonnement dépend essentiellement de sa composition chimique. Certains aérosols possèdent un grand pouvoir d'absorption, notamment les particules carbonées, et en particulier les suies.

### 2.2.2 Contribution de diffusion

La diffusion correspond à l'interaction entre le rayonnement et la matière qui se traduit par un changement de direction de la propagation des photons par rapport à la direction du rayonnement incident. Pour calculer cette contribution, on utilise différents modèles ou types de diffusion dont les domaines de validité sont délimités par la taille relative des cibles (molécules/ particules) par rapport à la longueur d'onde de la radiation incidente, grâce au quotient  $\beta$  (où  $D_p$  est le diamètre de la cible) :

$$\beta = \frac{\pi D_p}{\lambda} \quad (2.5)$$

#### 2.2.2.1 Cas où $\beta < 1$ : Diffusion moléculaire ou diffusion Rayleigh

Lorsque le diamètre des cibles est inférieur à la longueur d'onde, généralement quelques dizaines de nanomètre -comme c'est le cas des molécules d'air- le calcul de la diffusion est fait en utilisant le modèle de diffusion moléculaire ou diffusion Rayleigh. La section efficace de diffusion Rayleigh,  $\sigma_{Ray}$ , se calcule d'après:

$$\sigma_{Ray}(\lambda) = \frac{24 \pi^3}{\lambda^4 N^2} \frac{(m(\lambda)^2 - 1)^2}{(m(\lambda)^2 + 2)^2} \quad (2.6)$$

où  $m$  est l'indice de réfraction de l'air et  $N$  la densité de molécules d'air ( $\text{molécules} \cdot \text{cm}^{-3}$ ).

La contribution de la diffusion Rayleigh est importante dans les domaines ultraviolet et visible. La section efficace de diffusion Rayleigh suit une loi en  $\lambda^{-4}$ , et prédit que les courtes longueurs d'onde seront les plus diffusées.

#### 2.2.2.2 Cas où $\beta \sim 1$ : Diffusion de Mie

La théorie de Mie décrit la diffusion de la lumière par les particules sphériques et homogènes dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde (typiquement de 100 nm à 10  $\mu\text{m}$  dans l'UV-vis).

Il existe, ainsi que pour l'absorption, une section efficace de diffusion,  $\sigma_{dif}$ , un facteur de diffusion,  $Q_{dif}$  et un coefficient de diffusion,  $\alpha_{dif}$  :

$$Q_{dif} = \frac{\sigma_{dif}}{s_g} \quad (2.7)$$

$$\alpha_{dif} = \int_0^\infty \pi r^2 Q_{dif}(r) n(r) dr \quad (2.8)$$

Les modèles de diffusion de Rayleigh et de Mie sont très performants, mais ne permettent pas de reproduire les propriétés de diffusion de particules n'ayant pas une symétrie sphérique.

#### 2.2.2.3 Cas où $\beta > 1$ : optique géométrique

L'optique géométrique décrit la diffusion de la lumière produite par de grosses particules comme des gouttelettes nuageuses de quelques micromètres, ou des cristaux de glace de quelques dizaines de micromètres.

### 2.2.3 Extinction

Le coefficient d'extinction,  $\alpha_{ext}(\lambda)$  ( $cm^{-1}$ ), correspond à l'atténuation d'intensité lumineuse par unité de longueur, et sert à quantifier la perte totale d'énergie. Il est égal à la somme des coefficients de diffusion et d'absorption :

$$\alpha_{ext}(\lambda) = \alpha_{dif}(\lambda) + \alpha_{abs}(\lambda) \quad (2.9)$$

La dérivation de la loi de Beer-Lambert permet de diviser le trajet optique en éléments d'épaisseur  $ds$  :

$$dI(\lambda, s) = -I(\lambda, s) \alpha_{ext} ds \quad (2.10)$$

En intégrant on obtient la loi exponentielle de Beer-Lambert (équation 2.11), qui peut être exprimée, comme dans l'équation 2.12, en fonction de la contribution d'absorption par les  $i$  espèces chimiques, de la contribution d'extinction Rayleigh ( $\alpha_{Ray}(\lambda)$ ) et de la contribution de l'extinction de Mie ( $\alpha_{Mie}(\lambda)$ ) :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp \left[ - \int \alpha_{ext}(\lambda) ds \right] \quad (2.11)$$

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp \left[ - \left[ \sum_{i=1}^m \sigma(\lambda) c L + \alpha_{Ray}(\lambda) + \alpha_{Mie}(\lambda) \right] \right] \quad (2.12)$$

ou en fonction de l'épaisseur optique  $\tau(\lambda)$  (équation 2.13), grandeur qui représente la transparence de l'atmosphère, donnant la fraction de rayonnement absorbé ou diffusé par les composants de la couche traversée :

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp[-\tau(\lambda)] \quad (2.13)$$

$$\tau(\lambda) = \int_0^L \alpha_{ext}(\lambda) ds \quad (2.14)$$

L'épaisseur optique totale  $\tau_n(\lambda)$  est la somme de l'épaisseur optique de la diffusion Rayleigh ( $\tau_{Ray}(\lambda)$ , équation 2.16), des  $i$  espèces chimiques considérées ( $\tau_{esp}(\lambda)$ , équation 2.17), et des aérosols ( $\tau_{aéro}(\lambda)$ , équation 2.18) :

$$\tau_n(\lambda) = \tau_{Ray}(\lambda) + \tau_{esp}(\lambda) + \tau_{aéro}(\lambda) \quad (2.15)$$

$$\tau_{Ray}(\lambda) = \int_0^L \sigma_{Ray} N_{Ray} ds \quad (2.16)$$

$$\tau_{esp}(\lambda) = \int_0^L \sum_{i=1}^m \sigma_{esp,i} N_i ds \quad (2.17)$$

$$\tau_{aéro}(\lambda) = \int_0^L \alpha_{aéro} ds \quad (2.18)$$

## 2.3 La technique d'occultation stellaire

La technique de mesure de GOMOS est l'occultation stellaire (Hays et Roble, 1968), une technique de visée au limbe qui présente les mêmes avantages que l'occultation solaire -à savoir l'auto-calibration de l'instrument et une bonne résolution verticale-, et qui bénéficie en plus d'avantages tels qu'une bonne couverture géographique et des mesures effectuées en absence de rayonnement solaire lorsque l'atmosphère se trouve en équilibre. Les points faibles sont un signal peu intense (section 2.3.1) et l'inhomogénéité des mesures (2.3.2).

En moyenne, lors de chaque orbite GOMOS piste une trentaine d'étoiles. Une occultation débute lorsque le pointeur stellaire repère l'une d'entre elles, alors que la ligne de visée étoile-instrument se situe bien en dehors de l'atmosphère, typiquement à 120 km d'altitude. Les canaux UV, visible et proche IR sont enregistrés en continu, ce qui permet d'obtenir quelques spectres sans absorption, généralement autour de cinq (Bertaux et al., 2010), qui sont moyennés dans le but d'obtenir un seul spectre de référence,  $I_0(\lambda)$ . La transmission atmosphérique est obtenue en divisant les spectres enregistrés lors de l'occultation par le spectre de référence (équation 2.2). Le rapport de deux mesures enregistrées à quelques secondes d'intervalle permet d'éliminer du signal les dérives instrumentales, ce qui constitue un des principaux atouts de cette technique.

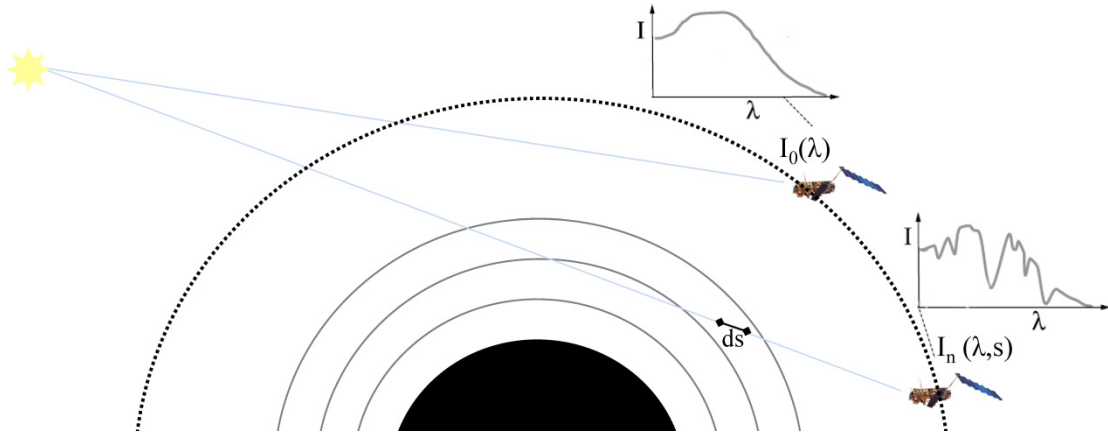


Figure 19. Schéma de l'occultation stellaire effectuée par GOMOS.

Le mouvement du satellite suivant son orbite (Figure 19) fait varier la position de la ligne de visée  $n$ , la faisant passer à travers différentes couches de l'atmosphère. L'altitude de la mesure est entièrement définie par la direction de l'étoile et la position de l'instrument. Chaque ligne de visée fournit un spectre dont l'intensité  $I_n(\lambda)$  est modifiée par l'atténuation sélective des constituants atmosphériques présents entre la source et l'instrument. L'analyse des spectres révèle leur présence d'après la loi de Beer-Lambert, mais la connaissance des sections efficaces est nécessaire; elles permettent de calculer la contribution de la diffusion Rayleigh et le nombre de molécules des espèces étudiées le long de la ligne de visée, ou quantités intégrées, en fonction de l'élévation. La variation des concentrations des espèces gazeuses ou des extinctions des aérosols avec l'altitude est obtenue par inversion mathématique.

### 2.3.1 Choix des sources lumineuses

Les étoiles constituent des sources lumineuses ponctuelles, ce qui permet une bonne résolution verticale. Cependant il s'agit également de sources peu brillantes, qui donnent lieu à des fluctuations du flux stellaire ou effets de scintillation chromatique (cf. page 60) qu'il est important de corriger.

La température effective des étoiles détermine la forme de leur spectre (Figure 20). Les étoiles utilisées doivent posséder un flux lumineux suffisant dans le domaine spectral dans lequel opère l'instrument, entre 250 et 950 nm. Pour cela, il a été établi que leur température effective soit comprise entre 3000 et 30000 K (Kyrölä et al., 2010a), car si celle-ci est inférieure, le flux lumineux est trop faible dans l'UV. Dans certains cas, même pour des températures élevées les fortes raies d'absorption de l'hélium et de l'hydrogène entre 300 nm et 400 nm peuvent donner des rapports signal/bruit irréguliers dans cette région du spectre. Ces problèmes sont moins contraignants dans le domaine visible, où le signal ainsi que le rapport signal sur bruit sont plus homogènes.

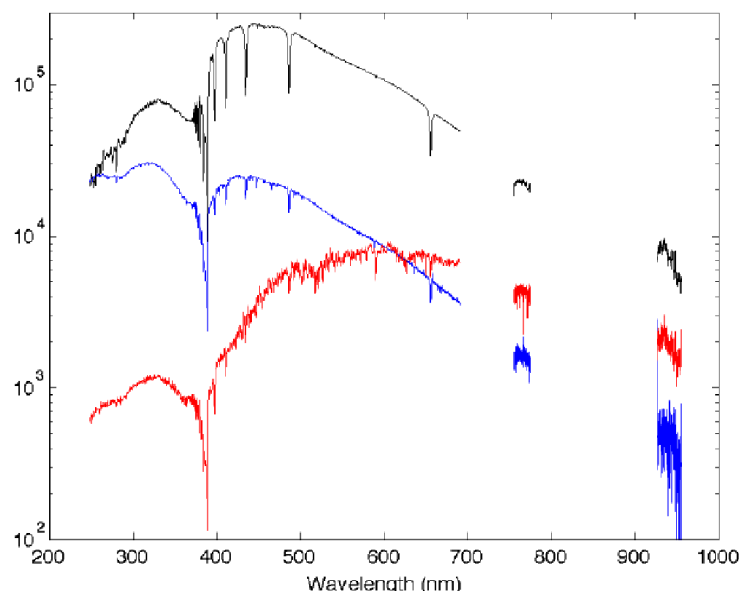


Figure 20. Intensité du flux de différentes étoiles en fonction de la longueur d'onde, enregistrée par GOMOS (Kyrölä et al., 2010a). En noir, étoile de magnitude -1,44 et 11000 K de température effective. En bleu, étoile de magnitude 1,25 et 30000 K de température. En rouge, magnitude 1,86 et température 4100 K.

Les étoiles sont classées selon leur magnitude, qui est définie d'après le flux lumineux observé à 550 nm. Avant le lancement de la plateforme, 1000 étoiles nommées de S0001 (Sirius, magnitude -1,44) à S1000 ont été répertoriées. Il s'est avéré par la suite que l'étoile de plus grande magnitude à pouvoir fournir une précision acceptable était S185, dont la magnitude est de 3,08.

L'utilisation de planètes comme sources lumineuses a aussi été prévue. Les avantages sont une plus forte intensité et moins de scintillation, mais une taille apparente trop importante rend impossible le suivi des occultations, comme c'est le cas pour Jupiter et Vénus. Mars est la seule planète utilisée.

### 2.3.2 Couverture géographique des observations

La couverture géographique des mesures dépend principalement du nombre de sources lumineuses aptes à être utilisées, et de leur position, qui varie au cours de l'année. Globalement, le nombre de sources lumineuses est centuplé par rapport à l'occultation solaire, étant donné qu'il existe plus d'une centaine d'étoiles assez brillantes pour être observées par GOMOS. L'instrument a donc le choix entre plus de 1600 occultations par jour, pour 400 à 600 effectuées. Le miroir situé en face du télescope permet de diriger la ligne de visée aux étoiles sélectionnées dans un angle très vaste; les étoiles les plus brillantes sont favorisées, mais dans le but d'obtenir une bonne couverture géographique, des sources de magnitude relativement haute doivent être utilisées. La couverture des mesures de GOMOS s'étend d'un pôle à l'autre du globe; cependant, quand ENVISAT se trouve près du pôle sud, l'angle de vision est limité par la disposition des composants de l'instrument (Bertaux et al., 2010), ce qui explique une disponibilité de données limitée aux latitudes antarctiques. Pour des orbites consécutives, la même étoile est occultée à la même latitude, mais à une longitude se décalant de  $25^\circ$  vers l'ouest par orbite. Chaque étoile peut être suivie pendant plusieurs mois, jusqu'à ce qu'elle se trouve hors du champ de vision de l'instrument. Il existe donc une variabilité saisonnière dans la distribution des étoiles, mais les mesures se répètent en principe de façon identique chaque année.

L'inhomogénéité de l'échantillonnage implique que certaines latitudes ont une densité de données plus importante que d'autres. Les variations en 2003 constituent un exemple de cette inhomogénéité (Figure 21); on observe une bonne couverture latitudinale, bien qu'irrégulière, pendant les premiers mois. Ensuite un faible nombre d'occultations ont eu lieu de mai à juillet, comme résultat de défaillances techniques de l'instrument. Des changements dans le choix de la succession d'étoiles à observer ont été effectués à partir de ces dates, ce qui a fortement réduit le nombre de mesures dans certaines bandes de latitude pour différentes périodes de l'année.

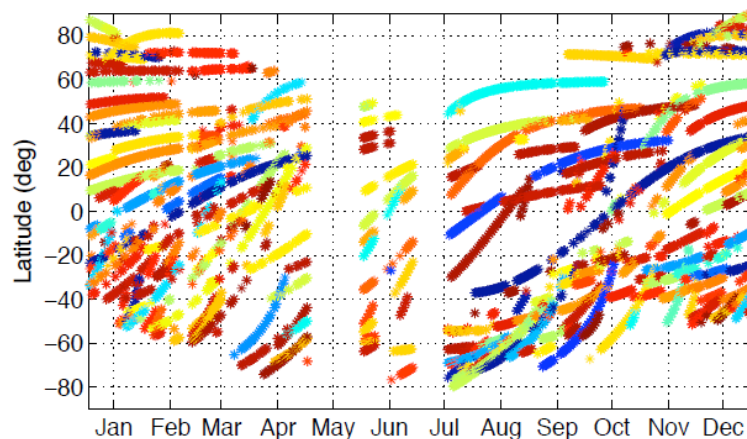


Figure 21. Couverture latitudinale des mesures nocturnes de GOMOS en 2003. Les couleurs indiquent les magnitudes des étoiles, les plus brillantes étant représentées en bleu foncé, les moins brillantes en rouge (Tamminen et al., 2010).

Une panne concernant l'angle de vision se produit en janvier 2005, et empêche l'obtention de données jusqu'au mois de juillet de la même année. Le mouvement du télescope étant

restreint, la couverture géographique à partir de cette date est moins dense, et le nombre d'occultations par jour décroît à 250-300 à partir de cette période (contre jusqu'à 600 auparavant).

### 2.3.3 Résolution verticale et précision

La source lumineuse ponctuelle que constituent les étoiles fournit une ligne de visée parfaitement connue, qui se traduit en une haute précision de mesure et une bonne résolution verticale. L'épaisseur des couches atmosphériques dépend des temps d'intégration ou temps de pause de l'instrument, qui sont assez courts car GOMOS mesure le rayonnement de chaque étoile en intervalles de 0,5 secondes. Ceci correspond, dans le pire des cas (c'est-à-dire lorsque la géométrie d'occultation est moins favorable), à des intervalles de 1,7 km dans une géométrie projetée au limbe (Kyrölä et al., 2004). La résolution d'échantillonnage est donc de 1,7 km dans le cas d'une occultation dans le plan orbital, et meilleure pour des occultations obliques, ce qui correspond à une résolution verticale d'environ 3 km. La couverture verticale des mesures est généralement comprise entre 120 à 150 km et une limite d'altitude inférieure qui se situe aux alentours de la haute troposphère, mais qui varie pour chaque occultation, selon les conditions (caractéristiques de l'étoile, état de l'atmosphère), jusqu'à 5 km d'altitude lorsque le ciel est dégagé. La présence de nuages dans la ligne de visée induit une perte de signal et achève l'occultation.

Les sources d'erreur inhérentes à la technique d'occultation sont :

-D'une part, l'hypothèse que les couches traversées par les lignes de visée sont homogènes, par exemple, en température et en concentration. Les structures locales sont lissées par cet effet.

-D'autre part, la détermination des sections efficaces en laboratoire est difficile, et les différences sont significatives selon le choix des données théoriques. En plus de cela, certaines raies sont très dépendantes de la température, et dans la stratosphère la température peut varier rapidement de plusieurs dizaines de degrés verticalement et horizontalement. Très peu de valeurs théoriques de sections efficaces sont d'ailleurs disponibles pour des températures inférieures à 200 K, typiquement rencontrées dans le vortex polaire.

L'utilisation d'étoiles comme sources lumineuses présente des difficultés supplémentaires. Tout d'abord, bien que les mesures de GOMOS soient estimées être de bonne qualité typiquement au-dessus de 15 km, leur précision est très variable, principalement à cause des grandes différences de température et de magnitude des étoiles utilisées, qui résultent en des rapports signal sur bruit disparates. La température de l'étoile n'influence pas la précision pour les basses altitudes, mais devient un facteur primordial au-dessus de 30 km, car la région UV du spectre est utilisée pour échantillonner l'ozone. La précision se dégrade fortement pour les étoiles froides et demeure constante jusqu'à 60 km pour une étoile de température d'environ 10000 K. Les meilleurs résultats peuvent être acquis autour de 60 km, pour une étoile de 30000 K (Tamminen et al., 2010). Les conditions d'illumination affectent la précision, mais ne seront pas discutées étant donné que dans ce travail ne sont utilisées que les occultations de nuit.

### 2.3.3.1 Effets de dilution et de scintillation

L'utilisation d'étoiles implique également une forte perturbation du rayonnement par la réfraction atmosphérique. Le gradient de densité produit une courbure des rayons lumineux, ou effet de dilution de l'intensité du rayonnement: la direction de propagation de celui-ci est modifiée lorsque la pression est élevée et que la colonne traversée est dense, car l'absorption et la diffusion lumineuse par les molécules d'air sont plus importantes à mesure que l'occultation progresse (Figure 22). Cet effet diminue la vitesse apparente de l'occultation typiquement en dessous de 25 km d'altitude, et augmente l'échantillonnage vertical en termes de distance (en kilomètres) entre chaque point de mesure (cf. Figures 36 et 37, pages 78 et 79). La dispersion du rayonnement (ou changement de l'indice de réfraction avec la longueur d'onde) produit des effets chromatiques, qui mènent à la séparation des différentes couleurs. Les rayons bleus sont plus réfractés que les rayons rouges, et arrivent à l'instrument avec un délai supplémentaire. Une conséquence importante est que l'altitude tangente dépend de la longueur d'onde.

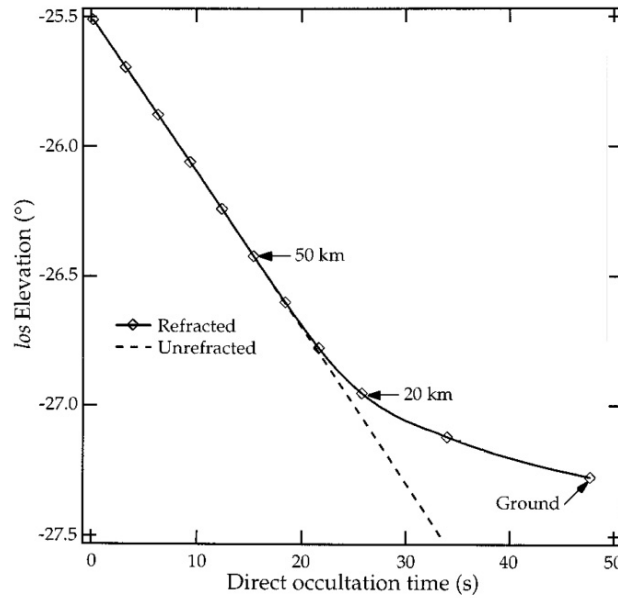


Figure 22. Variation de l'élévation de la ligne de visée en fonction du temps de l'occultation, causée par la réfraction atmosphérique (Dalaudier et al., 2001).

Un autre effet appelé scintillation apparaît car la densité atmosphérique ne varie pas uniquement de façon monotone en une décroissance depuis le sol vers le haut, mais présente des fluctuations inhomogènes qui provoquent des variations de l'intensité du rayonnement. Celles-ci apparaissent à des échelles allant de quelques kilomètres à moins d'un mètre, et sont dépendantes de la longueur d'onde (scintillation chromatique).

Pour corriger la dilution et la scintillation, la transmission atmosphérique (équation 2.2) est séparée en deux termes indépendants :

$$T_{atm} = T_{ext} + T_{ref} \quad (2.19)$$

où  $T_{ext}(\lambda)$  est la transmission correspondante aux processus d'extinction et constitue la base pour l'analyse des spectres, et  $T_{ref}(\lambda)$  est la transmission produite par les effets de réfraction.



Ce terme de réfraction est calculé en premier, et sa contribution est ensuite soustraite de la transmission totale. Une distinction est faite entre les variations lentes (qui peuvent être calculées de façon analytique) et les variations rapides (décrites grâce aux données des photomètres) de l'indice de réfraction :

$$T_{ref} = T_{dil} \cdot T_{sci} \quad (2.20)$$

où  $T_{dil}(\lambda)$  représente la contribution de la dilution, qui peut être modélisée avec précision, et  $T_{sci}(\lambda)$  représente les modulations par l'effet de scintillation, corrigées grâce au signal des photomètres. Cette correction est considérée comme valide uniquement lorsque l'obliquité (angle entre le mouvement de la ligne de visée par rapport à l'atmosphère et la direction au centre de la Terre) est égale à  $0^\circ$  (occultations totalement verticales), mais s'avère moins efficace pour des occultations tangentes (obliquité proche de  $90^\circ$ ).

## 2.4 Produits scientifiques

Les données fournies par l'instrument sont divisées en deux groupes: les données de niveau 1b et celles de niveau 2. Les algorithmes de l'ESA employés pour obtenir ces données (dorénavant appelés algorithmes officiels) ont été développés par une équipe scientifique qui inclut des membres du LATMOS à Paris, du *Finnish Meteorological Institute* à Helsinki et de l'Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique.

### 2.4.1 Données de niveau 1b

Le niveau 1b résulte de la calibration du signal et déduction des quantités physiques. Les principaux produits fournis sont les spectres de référence, les profils atmosphériques de référence -extraits des analyses ECMWF (jusqu'à 1hPa) et du modèle MSIS90 (pour les niveaux supérieurs)-, les spectres de transmission atmosphérique en fonction de la longueur d'onde (non corrigés des effets de scintillation et de dilution) et les flux des photomètres.

### 2.4.2 Données de niveau 2

Le niveau 2 résulte de la transformation en paramètres de distribution atmosphérique, tels que les profils des densités de colonne et des concentrations d'ozone,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ , air, oxygène et vapeur d'eau, ainsi que les profils verticaux d'extinction des aérosols et les profils à haute résolution de température. Voici certaines particularités de l'algorithme employé pour l'obtention de ces grandeurs :

- La correction de la scintillation se fait dans l'UV-vis d'après les différences observées dans les deux photomètres, qui opèrent à des longueurs d'onde différentes (Dalaudier et al., 2001).
- La correction de la dilution est calculée d'après les profils verticaux de référence, pour lesquels les analyses ECMWF et le modèle MSIS90 sont utilisés (GOMOS ESL, 2007).
- La diffusion Rayleigh est calculée à partir des données de pression et température de l'ECMWF, et soustraite du signal pour obtenir les quantités intégrées des espèces chimiques.
- La contribution des aérosols est ajustée par un polynôme de deuxième degré dans tout le domaine spectral.

Nombreux travaux ont déjà présenté les résultats de l'application de l'algorithme officiel (données de niveau 2) aux données de l'instrument GOMOS pour l'étude des aérosols stratosphériques. Vanhellemont et al. (2005b) étudient l'année 2003 avec une attention spéciale portée aux nuages cirrus et aux nuages stratosphériques polaires; d'après l'analyse d'environ 50000 occultations, les auteurs montrent un maximum d'extinction aux tropiques à une altitude entre 15 et 17 km (Figure 23), dû à la présence de cirrus très fins (sub-cirrus). Cette étude permet de confirmer l'habilité de l'instrument et de l'algorithme à reproduire l'extinction des aérosols stratosphériques, et la possibilité de l'élaboration d'une climatologie globale complète pour les suivantes années de la mission.

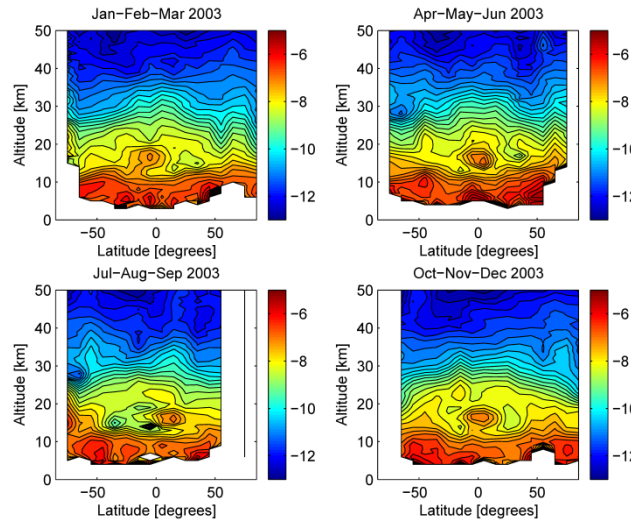


Figure 23. Logarithme des valeurs médianes de l'extinction à 500 nm pour différentes périodes en 2003 (Vanhellemont et al., 2005b).

Dodion et al. (2008) réalisent une comparaison des résultats d'observations de cirrus et de nuages stratosphériques polaires avec les instruments GOMOS et ACE, pour les années 2004 et 2005. Leur travail permet d'établir les différences entre les deux années, avec un contenu global plus important en 2005, comme le montre la Figure 24 :

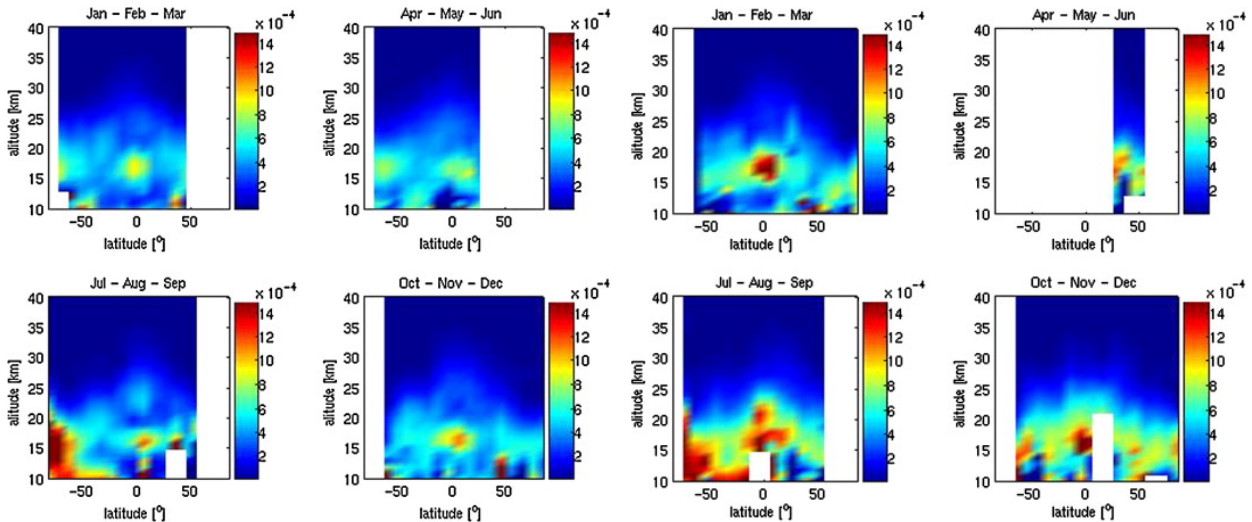


Figure 24. Valeurs médianes de l'extinction à 500 nm en  $\text{km}^{-1}$  pour différentes périodes en 2004 (gauche) et en 2005 (droite), d'après Dodion et al., 2008.

Récemment, une série de travaux proposent une mise à jour des algorithmes utilisés, de l'estimation de l'incertitude, et d'une vue d'ensemble des produits GOMOS (Bertaux et al., 2010, Fanton d'Andon et al., 2010, Hauchecorne et al., 2010, Keckhut et al., 2010, Kyrölä et al., 2010a, 2010b, Tamminen et al., 2010).

En ce qui concerne le traitement des aérosols, une climatologie globale pour la période 2002 à 2008 est présentée par Vanhellemont et al., 2010 (voir Figure 25 ci-dessous). Les auteurs identifient les différents types de particules stratosphériques: PSCs, sub-cirrus tropicaux, aérosols de fond et aérosols volcaniques après l'éruption de La Soufrière (17°N, 62°W) le 20 mai 2006.

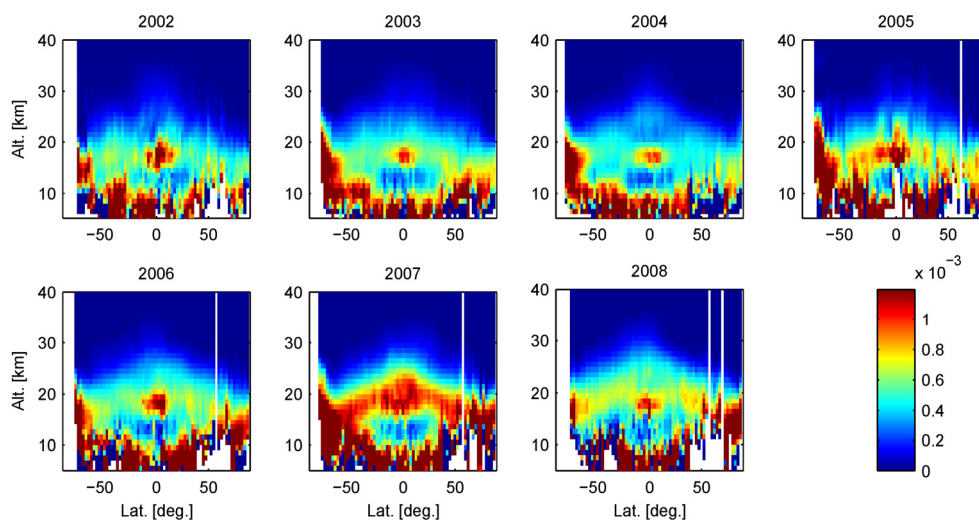


Figure 25. Valeurs médianes annuelles de l'extinction à 500 nm (en  $\text{km}^{-1}$ ) par année, de 2002 à 2008 (Vanhellemont et al., 2010).

Cependant, bien que la méthode décrite dans ces travaux soit efficace et fournisse de bons résultats, elle ne permet pas l'étude de la moyenne et haute stratosphère, car la limite de détection semble être atteinte en général aux altitudes supérieures à 30 km. C'est dans le but d'explorer cette zone de la stratosphère qu'une ré-analyse des données GOMOS est utile, en utilisant pour le traitement des données de niveau 1b l'algorithme d'inversion présenté dans le Chapitre suivant.



---

# Chapitre 3

## L'algorithme d'inversion

L'algorithme présenté au cours de ce chapitre a été développé au LPC2E pour le traitement des données des instruments sous ballon stratosphérique AMON (Absorption par les Minoritaires Ozone et NO<sub>x</sub>, Robert, 1992) et SALOMON (Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et NO<sub>x</sub>, Renard et al., 2000), qui ont servi par ailleurs à la validation des données GOMOS (Renard et al., 2003a, 2004, 2008a). Les mesures ballon étant localisées dans le temps et dans l'espace, une partie de ce travail de thèse a consisté à automatiser les calculs pour rendre possible l'analyse d'une grande quantité de profils, typiquement une centaine de milliers de profils par année, et à adapter l'algorithme aux spécificités de GOMOS. L'utilisation de sources lumineuses de faible magnitude, qui sont différentes les unes des autres, et dont la couleur varie également, implique des spectres dont le rapport signal sur bruit est irrégulier. Pour cette raison l'utilisation d'un critère de sélection basé sur la qualité du signal des profils individuels est primordiale, mais s'est avérée insuffisante. D'autres critères concernant différents paramètres ont été établis et sont décrits dans la deuxième partie de ce chapitre. Les données d'extinction obtenues par cette méthode sont comparées aux données officielles de niveau 2 dans leurs versions 5.0 et 6.0, et aux données SAGE III dans leur version 3.0 pour quelques cas. La validation de la méthode utilisée est décrite dans la section 3.3.

### 3.1 Description de la méthode d'analyse

À partir des variations d'intensité enregistrées pendant une occultation, les concentrations des espèces présentes dans la ligne de visée considérée et l'extinction attribuée aux aérosols peuvent être déterminées. Pour cela, la valeur des sections efficaces utilisée est primordiale.

La correction de la scintillation chromatique (cf. page 68), ainsi que le choix de la fonction analytique utilisée pour l'ajustement du spectre résiduel (section 3.1.2.3) sont des points importants dont le traitement diffère de la méthode employée par les produits officiels.

Les positions de la source lumineuse et du satellite à chaque étape de l'occultation déterminent la ligne de visée, dont le point le plus proche de la surface Terrestre permet de définir l'altitude tangente  $z(s)$ , qui dépend de la longueur d'onde à cause de la scintillation chromatique. Les transmissions atmosphériques sont calculées en divisant chaque spectre enregistré au cours de l'occultation par la moyenne des spectres de référence enregistrés à des altitudes tangentes supérieures à 100 km :

$$T_n(\lambda) = \frac{I_n(\lambda)}{I_0(\lambda)} \quad (3.1)$$

Ces transmissions en fonction de la longueur d'onde sont fournies par les produits officiels de niveau 1b, données qui ont été récupérées au LATMOS dans leur version 5.0. Elles constituent le point de départ de l'algorithme d'inversion, qui fonctionne en deux étapes principales :

- L'inversion spectrale informe sur les constituants présents -car chacun possède une signature spectrale caractéristique- et fournit une estimation des quantités intégrées des espèces chimiques et des épaisseurs optiques des aérosols à chaque altitude tangente de l'occultation.

- La variation des concentrations des espèces atmosphériques et de l'extinction des aérosols avec l'altitude est calculée par inversion verticale. L'hypothèse d'une atmosphère localement symétrique et sphérique est faite, chaque couche étant donc considérée homogène.

Aussi bien dans l'algorithme officiel que dans celui décrit dans ce chapitre, la première étape est l'inversion spectrale, puis est effectuée l'inversion spatiale. Dans le but d'évaluer l'importance de l'ordre de ces opérations, quelques cas d'étude ont été testés au LPC2E, en effectuant d'abord l'inversion spatiale puis l'inversion spectrale. Les résultats montrent que les différences entre les deux méthodes sont comprises dans les barres d'incertitude des coefficients d'extinction.

L'outil informatique utilisé pour le traitement mathématique ainsi que pour la présentation des résultats est le langage IDL (*Interactive Data Language*).

### 3.1.1 Domaine spectral

Le choix des bandes spectrales dépend des fenêtres atmosphériques dans lesquelles la transmission du rayonnement électromagnétique est élevée et les constituants atmosphériques à étudier possèdent des transitions. Dans le cas de l'algorithme du LPC2E, le domaine spectral est compris entre 400 et 675 nm, et est donc restreint par rapport à l'algorithme officiel, ceci pour plusieurs raisons. D'une part, il est question d'avoir un flux lumineux important et constant, et le flux de l'étoile est généralement moins important pour des longueurs d'onde inférieures à 400 nm, et plus variable selon la température de l'étoile en dehors du domaine visible. D'autre part, il s'agit d'éviter les plus fortes contributions de la diffusion Rayleigh, qui ont également lieu dans le proche UV. Le domaine visible offre donc un bon compromis.

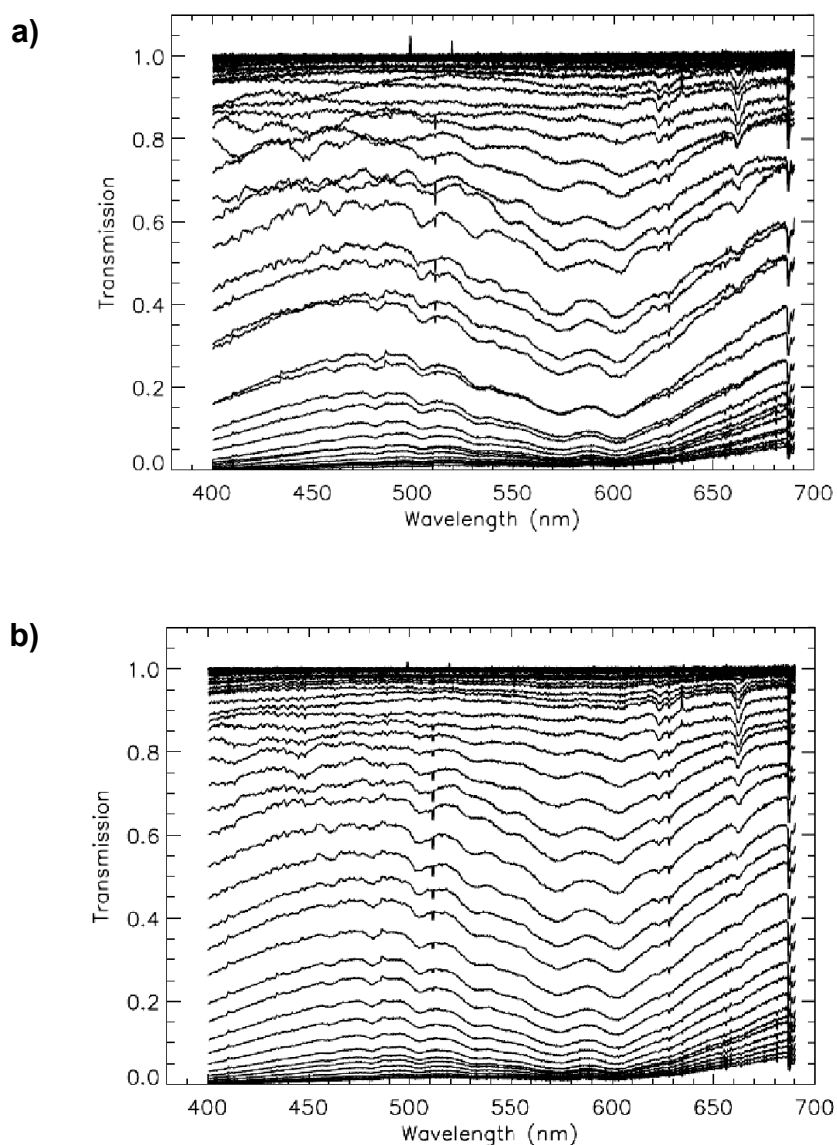


Figure 26. Exemple de transmission atmosphérique pour différentes lignes de visée lors d'une occultation de l'étoile Sirius le 16 janvier 2006 (a), même transmission corrigée de l'effet de scintillation (b), Renard et al., 2010b.

Le spectre de transmission (Figure 26a) contient les contributions d'absorption et de diffusion par les constituants atmosphériques. L'échelle de longueurs d'onde est calculée à partir des raies d'absorption stellaire, travail d'ajustement qui est déjà fourni dans les produits officiels de niveau 1b.

Cependant, les transmissions ne sont pas corrigées de l'effet de scintillation (section 2.3.3.1), qui se manifeste par des fluctuations du rayonnement, du rouge vers le bleu, qui prennent de l'amplitude à mesure que l'occultation progresse. Malgré l'utilisation des photomètres, il demeure dans les spectres un composant scintillant sous forme d'oscillations aux basses fréquences (e.g. Fussen et al., 2005). Étant donné que celles-ci sont générées par les irrégularités aléatoires de la densité de l'air, et qu'elles ne changent pas l'intensité moyenne du rayonnement (e.g. Sofieva et al., 2009), il peut être suffisant d'effectuer un lissage spatial vertical et un lissage spectral horizontal pour obtenir une bonne correction de cet effet :

- Le lissage spatial est réalisé en appliquant une moyenne glissante sur trois spectres de transmission consécutifs (Figure 26b), procédure qui est utilisée depuis des années au LPC2E (Renard et al. 1996, 2001b, 2002, 2003a, 2003b, 2004).

- Le lissage spectral horizontal est effectué avant de procéder à l'inversion spectrale, sur un nombre de pixels qui varie selon chaque espèce: dix pixels dans le domaine spectral de l'ozone ainsi que dans celui du NO<sub>3</sub>, et six pixels dans le domaine spectral de dioxyde d'azote. Le choix de ces ajustements repose sur les valeurs optimisées à partir de travaux concernant différents instruments sous ballon (Renard et al., 1996, 2000).

De cette façon (contrairement à la situation rencontrée dans les produits officiels), l'efficacité de la correction de la scintillation ne dépend pas de la géométrie de l'occultation. Du fait de l'éloignement entre l'instrument et l'atmosphère, il faut en plus tenir compte de l'effet de dilution, qui est corrigé -tout comme dans les produits officiels de niveau 2- en appliquant un coefficient multiplicateur dépendant de l'altitude tangente de la ligne de visée.

Les corrections de la scintillation et de l'effet de dilution sont les parties les plus sensibles du traitement. Un échec dans la correction de la scintillation pourrait produire des dépendances spectrales artificielles, et une erreur dans le coefficient de dilution pourrait induire des biais dans les valeurs totales d'extinction.

#### 3.1.2 Inversion spectrale

À partir des spectres de transmission atmosphérique, l'épaisseur optique tangente est calculée en prenant le logarithme népérien de l'inverse des spectres de transmission :

$$\tau_n(\lambda) = \ln \frac{1}{T_n(\lambda)} \quad (3.2)$$

L'épaisseur optique tangente totale  $\tau_n$  représente, pour chaque ligne de visée  $n$ , la somme de l'épaisseur optique de la diffusion Rayleigh (équation 2.16), des  $i$  espèces chimiques considérées (équation 2.17), et des aérosols (équation 2.18). Ces différentes contributions sont séparées lors de l'inversion spectrale :

$$\tau_n(\lambda) = \tau_{Ray}(\lambda) + \tau_{esp}(\lambda) + \tau_{aéro}(\lambda) \quad (3.3)$$



La Figure 27 montre deux exemples d'épaisseur optique totale pour deux lignes de visée à différents moments de l'occultation :

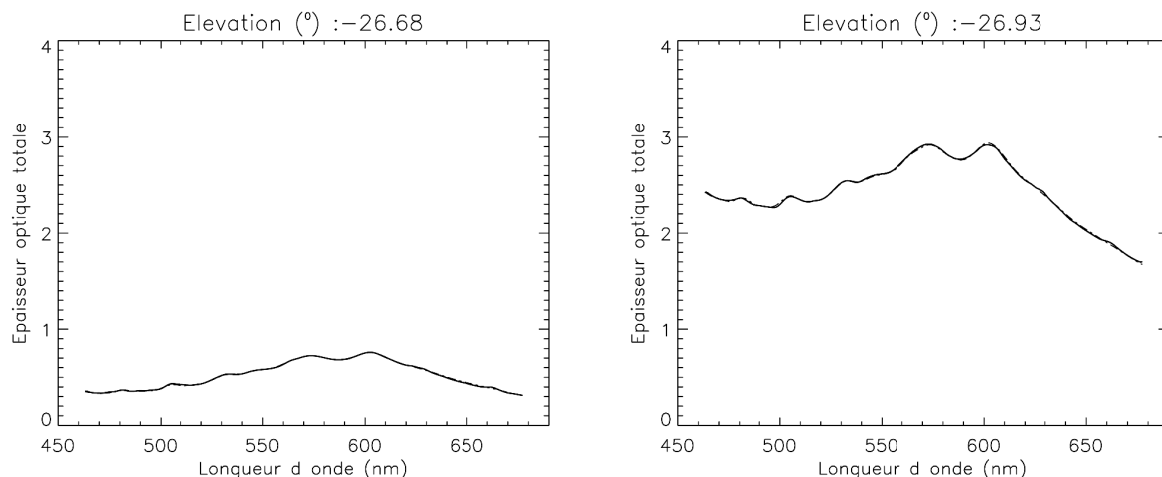


Figure 27. Épaisseur optique totale pour deux spectres enregistrés le 11 mars 2004, lors de l'occultation de l'étoile S0004, de magnitude -0.01, à 9°N de latitude. L'élévation correspond à une altitude de 32,39 km (à gauche), et de 18,32 km (à droite). Mesure en trait plein, ajustement spectral en pointillés.

### 3.1.2.1 Diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh (section 2.2.2.1) est la contribution principale dans les spectres, et se traduit en une décroissance progressive de l'épaisseur optique avec la longueur d'onde d'après une loi  $\lambda^{-4}$ .

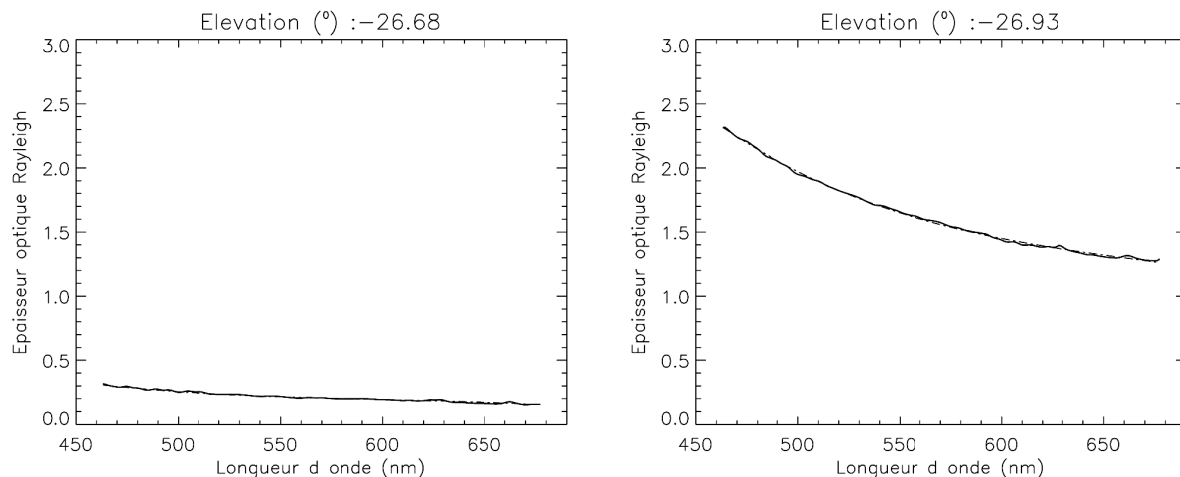


Figure 28. Épaisseur optique de la diffusion Rayleigh pour la même occultation et les mêmes élévations que dans les figures précédentes. Mesure en trait plein, ajustement en pointillés.

L'épaisseur optique Rayleigh (Figure 28) est calculée sur tout le domaine spectral par un ajustement mathématique des sections efficaces données par Bucholtz et al. (1995), et en utilisant les données de pression et température disponibles dans les produits officiels de niveau 2. Ces derniers font usage des analyses ECMWF, car les résultats obtenus à partir des photomètres ne sont pas assez précis (GOMOS ESL, 2007).

La diffusion Rayleigh est ensuite soustraite à l'épaisseur optique totale, ce qui conduit à un spectre de plus faible intensité, comme celui montré dans la Figure 29, page 72.

#### 3.1.2.2 Méthode DOAS

La spectroscopie d'absorption optique différentielle, ou méthode DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) est une technique spectroscopique largement employée pour l'identification et quantification par télédétection des gaz trace atmosphériques, qui possèdent des structures d'absorption étroites dans les domaines proche UV et visible (Platt, 1994).

Cette méthode est employée dans l'algorithme lors de la recherche de l'ozone, du NO<sub>2</sub> et du NO<sub>3</sub>. L'idée générale est de séparer toutes les contributions présentes dans les spectres en deux composantes: une première, qui varie lentement avec la longueur d'onde (basses fréquences), inclut la contribution à l'extinction du rayonnement par diffusion moléculaire et par les particules d'aérosol; une deuxième composante, qui varie rapidement avec la longueur d'onde (hautes fréquences), inclut l'absorption par les espèces chimiques.

Ainsi, seulement les structures dues aux bandes d'absorption étroites (sections efficaces des espèces chimiques, ou sections efficaces d'absorption différentielles), sont utilisées pour identifier les espèces absorbantes et pour quantifier leurs quantités intégrées le long de la ligne de visée. Le résultat de l'application de cette méthode différentielle est l'apparition d'oscillations de part et d'autre d'une valeur moyenne proche de zéro.

Les sections efficaces d'absorption des espèces chimiques recherchées peuvent être mesurées en laboratoire. Elles sont dépendantes de la longueur d'onde, de la pression, et de la température:  $\sigma_{esp} = \sigma_{esp}(\lambda, P, T)$ . En première approximation, on considère que les sections efficaces des espèces ne dépendent pas de la pression:  $\sigma_{esp} = \sigma_{esp}(\lambda, T)$ . Si par ailleurs les dépendances en fonction de la température sont négligeables, on peut en général écrire:  $\sigma_{esp} = \sigma_{esp}(\lambda)$ . L'épaisseur optique peut alors être exprimée comme suit :

$$\tau_{esp}(\lambda) = \sum_{i=1}^m \sigma_{esp,i} \int_0^L N_i ds \quad (3.4)$$

ce qui permet de définir la quantité intégrée (*QI*) de l'espèce *i*, exprimée en unités de *molécules·cm<sup>-2</sup>*, qui représente l'intégrale des concentrations d'une espèce chimique le long de chaque ligne de visée *n* :

$$QI_i = \int_0^L N_i ds \quad (3.5)$$

La recherche des quantités intégrées se fait dans le domaine spectral de chaque espèce (défini en fonction de l'absorption de chaque composant et de la qualité du signal), en utilisant une fonction IDL appelée REGRESS, qui emploie une régression linéaire par la méthode des moindres carrés et qui minimise la somme quadratique des écarts entre la mesure des épaisseurs optiques et l'estimation faite en utilisant les sections efficaces des espèces.

La contribution de l'ozone est présente sur tout le domaine visible par la bande d'absorption de Chappuis, centrée autour d'environ 600 nm, l'avantage étant que les sections efficaces à ces longueurs d'onde sont bien connues, et peu dépendantes de la température. La bande de Chappuis sera donc utilisée lors de la recherche des quantités intégrées de cette espèce, en appliquant pour éliminer les basses fréquences un polynôme de degré 3 :

$$\tau_n(\lambda) - \tau_{nRay}(\lambda) = \tau_{nO_3}(\lambda) + c_{n0} + c_{n1} \lambda + c_{n2} \lambda^2 + c_{n3} \lambda^3 \quad (3.6)$$

(où  $\tau_{nO_3}(\lambda) = \sigma_{O_3} \cdot QI_{nO_3}$ ), et en employant les sections efficaces de l'Université de Brème mesurées par Voigt et al. (2001), disponibles sur :

[www.iup.unibremen.de/gruppen/molspec/databases/referencespectra/o3spectra/index.html](http://www.iup.unibremen.de/gruppen/molspec/databases/referencespectra/o3spectra/index.html)

Ainsi, la régression linéaire ajuste les quantités intégrées de l'ozone,  $QI_{nO_3}$ , et les coefficients du polynôme,  $c_{n0}$ ,  $c_{n1}$ ,  $c_{n2}$  et  $c_{n3}$  pour chaque ligne de visée.

La Figure 29 montre un exemple de cet ajustement à différents moments de l'occultation. L'enveloppe générale de l'ozone est présente dans la courbe après déduction des plus basses fréquences par le polynôme de troisième degré: il s'agit donc en réalité d'une méthode semi-DOAS; le choix de son utilisation est empirique, et repose sur des années d'essais réalisés lors de l'inversion de données des instruments AMON et SALOMON (il en est de même pour les approches différentes dans le traitement de  $NO_2$  et de  $NO_3$ ). La Figure 30 montre la variation des quantités intégrées ainsi calculées, pour la même occultation, en fonction de l'élévation.

La bande d'absorption du  $NO_2$  s'étend de 290 nm à 600 nm, avec des maxima autour de 450 nm. Sur le domaine spectral compris entre 415 nm et 550 nm, les contributions de diffusion Rayleigh et d'ozone sont soustraites du signal, et une procédure de filtrage numérique *FFT* (*Fast Fourier Transform*) est appliquée, de sorte que les six plus basses fréquences sont éliminées (Renard, 1996, 2000) :

$$FFT [\tau_n(\lambda) - \tau_{nRay}(\lambda) - \tau_{nO_3}(\lambda)] = \tau_{nNO_2}(\lambda) \quad (3.7)$$

Une fois le continuum spectral soustrait, il demeure une épaisseur optique  $\tau_{nNO_2}(\lambda)$  relative, avec des variations de part et d'autre d'une valeur proche de zéro (Figure 31, page 73). Les sections efficaces de l'Université de Brème sont utilisées pour la recherche des quantités intégrées, dont un exemple pour une occultation est présenté dans la Figure 32.

Le  $NO_3$  possède deux bandes d'absorption, une à 623 nm et l'autre à 662 nm. La bande d'absorption choisie pour la recherche des quantités intégrées est celle centrée à 662 nm, et le domaine étudié est compris entre 655 nm et 670 nm (Figure 33, page 74). Dans cet intervalle, il n'y a pas de contamination par d'autres absorbants que l'ozone. Un polynôme de degré 1 est utilisé pour éliminer les basses fréquences (procédure semi-DOAS), et les sections efficaces de l'Université de Brème sont utilisées pour l'ajustement. La Figure 34 montre un exemple des quantités intégrées pour  $NO_3$  en fonction de l'élévation.

Les barres d'incertitude dans les Figures 30, 32 et 34 représentent l'écart type entre le spectre d'épaisseurs optiques déduit des mesures de GOMOS et le spectre calculé par régression linéaire à partir des sections efficaces d'absorption.

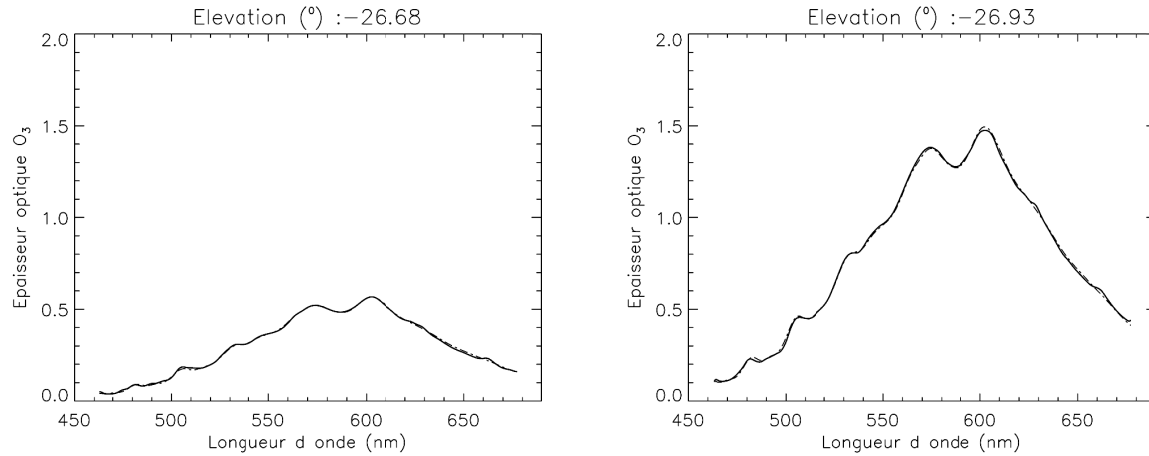


Figure 29. Ajustement par la méthode semi-DOAS de l'épaisseur optique de l'ozone par les sections efficaces, pour la même occultation et le mêmes élévations que dans les figures précédentes (mesure en trait plein, ajustement en pointillés).

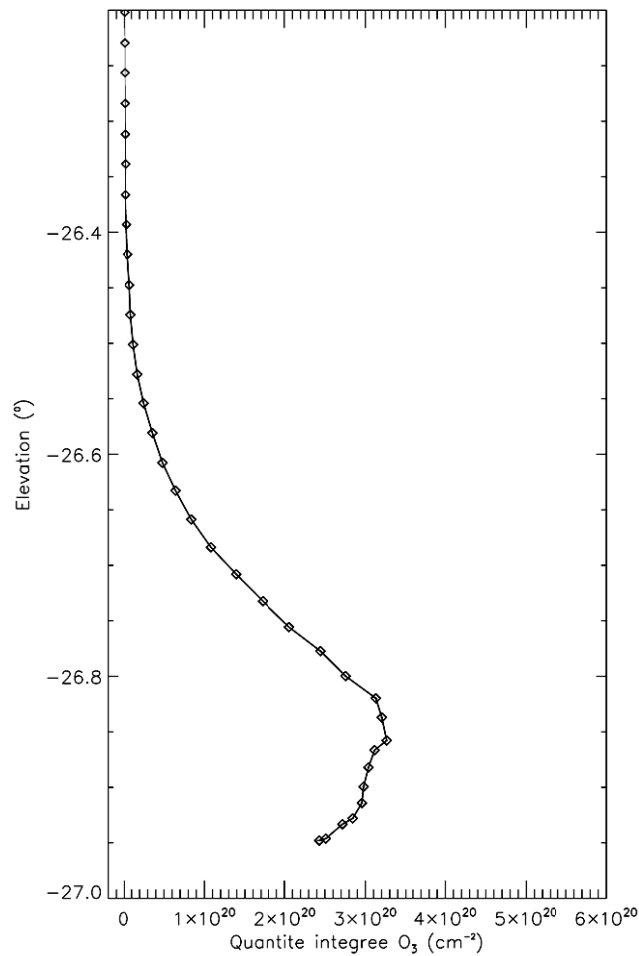


Figure 30. Profil de quantités intégrées de l'ozone pour la même occultation que dans les figures précédentes, où chaque point correspond à une ligne de visée.

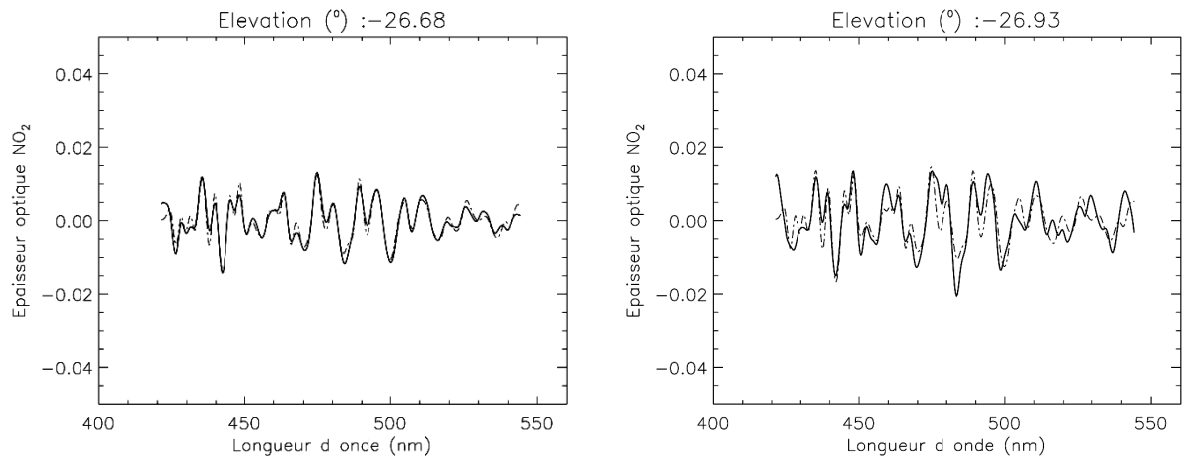


Figure 31. Ajustement par la méthode DOAS des épaisseurs optiques différentielles du  $\text{NO}_2$ , pour la même occultation et les mêmes élévations que dans les figures précédentes. Après élimination des basses fréquences par transformée de Fourier, il demeure une épaisseur optique relative, qui présente des oscillations autour d'une valeur moyenne proche de zéro.

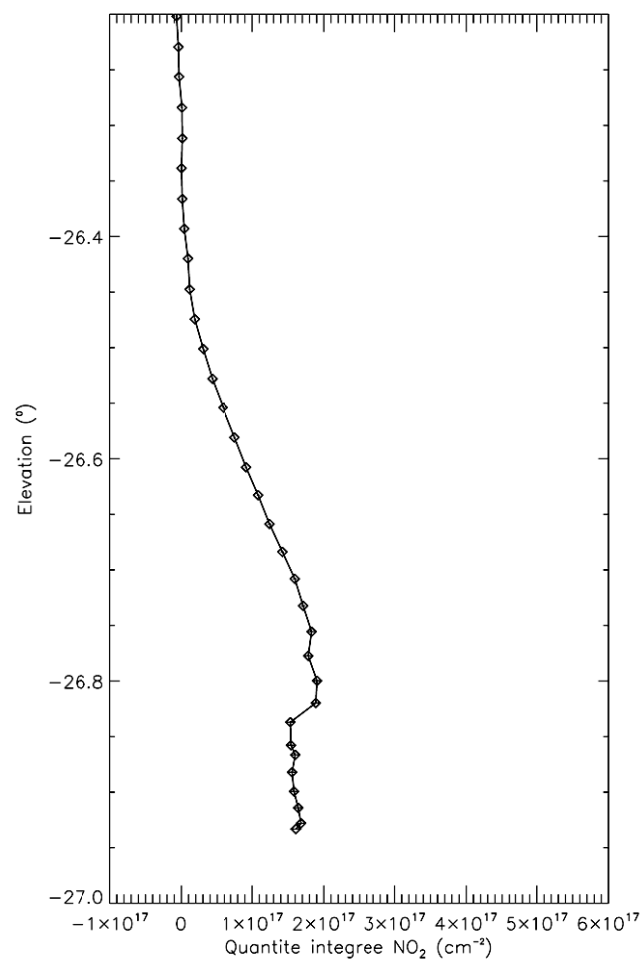


Figure 32. Profils des quantités intégrées de  $\text{NO}_2$  pour la même occultation que dans les figures précédentes, où chaque point correspond à une ligne de visée.

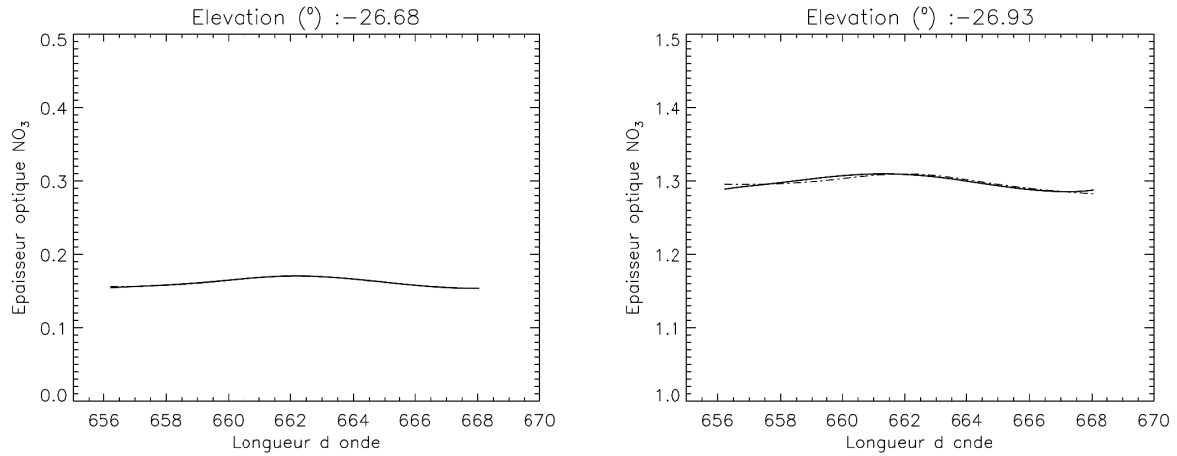


Figure 33. Ajustement par la méthode semi-DOAS des épaisseurs optiques du  $\text{NO}_3$  pour la même occultation que dans les figures précédentes.

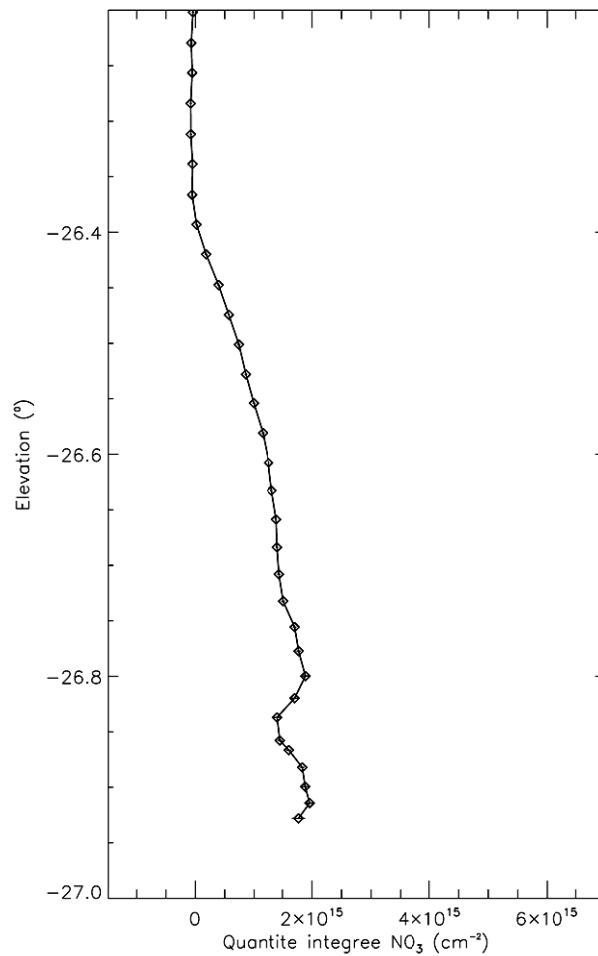


Figure 34. Profils des quantités intégrées de  $\text{NO}_3$  pour la même occultation que dans les figures précédentes, où chaque point correspond à une ligne de visée

### 3.1.2.3 Contribution des aérosols

À partir des épaisseurs optiques brutes, après sous soustraction de la diffusion Rayleigh et des épaisseurs optiques calculées des espèces chimiques, le spectre résiduel (équation 3.8) est attribué à la contribution des aérosols.

$$\tau_{Aéro}(\lambda) = \tau_n(\lambda) - \left[ \sigma_{Ray}(\lambda) \int_0^L N_{Ray}(z(s)) ds + \sum_{i=1}^m \sigma_{esp,i} \int_0^L N_i(z(s)) ds \right] \quad (3.8)$$

Des tests ont montré que la prise en compte de la faible contribution du  $\text{NO}_3$ , dont l'ajustement est souvent peu précis, induit plus d'incertitudes que n'améliore l'ajustement de l'épaisseur optique des aérosols. Il a donc été décidé de ne pas soustraire cette contribution; l'indice  $esp, i$  dans l'équation 3.8 fait donc référence uniquement à  $\text{O}_3$  et  $\text{NO}_2$ .

En général, le spectre de l'épaisseur optique ou de l'extinction des aérosols varie sans forts à-coups en fonction de la longueur d'onde dans le domaine visible. C'est pourquoi des fonctions analytiques assez lisses peuvent être utilisées pour ajuster le spectre. La loi d'Angström,  $\lambda^{-\alpha}$  (où le coefficient d'Angström  $\alpha$  varie avec la taille des aérosols), ou des variantes assimilées sont fréquemment utilisées (comme dans Vanhellemont et al., 2005a), car la décroissance avec la longueur d'onde est le comportement typique d'un spectre d'extinction pour de petites particules, telles que celles qui constituent la population d'aérosols de fond, et une décroissance comme  $\lambda^{-1}$  est bien différenciée de la diffusion Rayleigh. Cependant, un tel modèle est incapable de reproduire l'extinction produite par de plus grandes particules, dont la dépendance spectrale n'est pas monotone, telles des particules colorées. Des fonctions plus complexes, comme des polynômes de degré 2, 3 ou 4 (équations 3.9, 3.10, 3.11) présentent l'avantage de pouvoir reproduire par exemple un maximum d'extinction dans le domaine visible.

$$\tau_{Aéro}(\lambda) = \sigma(c_0 + c_1 \Delta\lambda + c_2 \Delta\lambda^2) \quad (3.9)$$

$$\tau_{Aéro}(\lambda) = \sigma(c_0 + c_1 \Delta\lambda + c_2 \Delta\lambda^2 + c_3 \Delta\lambda^3) \quad (3.10)$$

$$\tau_{Aéro}(\lambda) = \sigma(c_0 + c_1 \Delta\lambda + c_2 \Delta\lambda^2 + c_3 \Delta\lambda^3 + c_4 \Delta\lambda^4) \quad (3.11)$$

où  $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_{ref}$ , la longueur d'onde de référence étant 500 nm.

D'après les simulations décrites par Vanhellemont et al. (2006), l'utilisation d'un polynôme de deuxième degré ou supérieur est impérative, car seulement ceux-ci sont fiables dans la description du comportement spectral des aérosols à toutes les altitudes. Pour les altitudes supérieures à 25 km, les incertitudes diminuent lorsque davantage de paramètres sont utilisés; l'inverse est observé aux altitudes inférieures, car les polynômes de degré supérieur peuvent être sensibles aux variations causées par le bruit instrumental. Les polynômes de degré 3, 4 ou 5 reproduisent globalement l'extinction de façon similaire, mais le nombre de paramètres à déterminer augmentent avec le degré du polynôme.

Le compromis doit être trouvé selon les objectifs de l'analyse. La détermination d'un plus grand nombre de paramètres induit une plus grande incertitude dans le traitement, mais une description plus réaliste car elle conduit à moins de biais dans les résultats. Le but de ce

travail étant d'établir une climatologie à partir d'une grande quantité de données qui sont moyennées pour obtenir le résultat final, avec un spécial intérêt porté à la moyenne et haute stratosphère, il a été estimé préférable d'utiliser un polynôme d'un degré élevé pour réduire le biais au maximum.

Pour obtenir la dépendance spectrale de l'épaisseur optique, la courbe est ainsi ajustée par un polynôme de degré 4 (équation 3.11), de deux ordres supérieur à celui utilisé dans les versions 5.0 et 6.0 de l'algorithme officiel. Ce dernier peut modéliser l'extinction pour des mesures appliquées à la basse stratosphère, et à des longueurs d'onde proches de 500 nm (section 3.3). Cependant, il ne sera pas suffisant pour l'ajustement de la dépendance spectrale dans les zones de plus faible signal, comme c'est le cas dans la moyenne stratosphère, typiquement au-dessus de 30 km d'altitude. En outre, à ces altitudes des effets de couleur apparaissent souvent (voir par exemple Figure 44, page 87), et ne peuvent être reproduits à moins d'utiliser un polynôme de degré supérieur.

La Figure 35 présente deux exemples d'ajustement par moindres carrés du spectre résiduel à un polynôme de quatrième degré, à deux moments différents de l'occultation. On constate que le polynôme utilisé ne génère pas de structures artificielles lors d'une décroissance monotone ou neutre du signal :

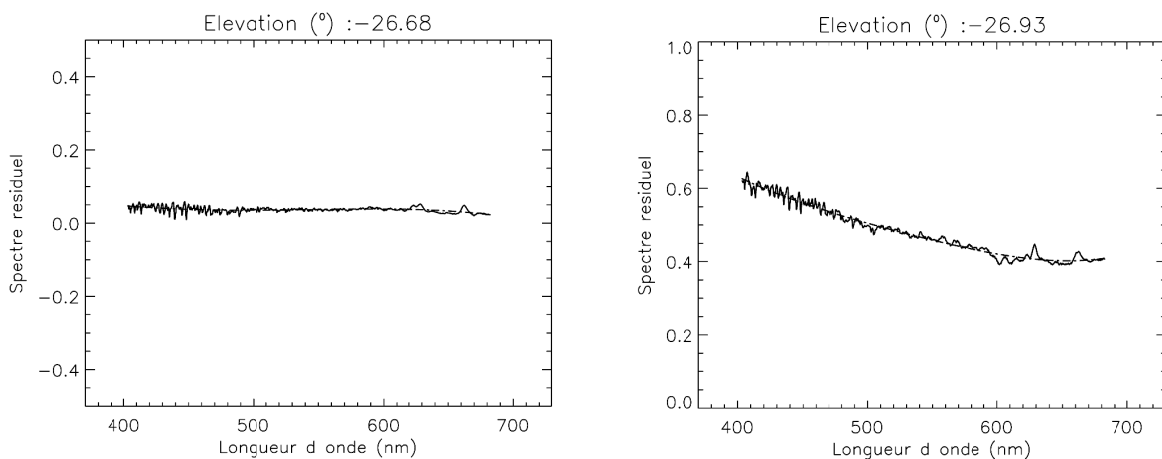


Figure 35. Exemple de résidu spectral attribué à la contribution des aérosols à différents moments de l'occultation de l'étoile S0004, de magnitude -0.01, le 11 mars 2004 à 9°N de latitude (mesure en trait plein, ajustement polynomial par moindres carrés en pointillés).

La fonction REGRESS fournit l'incertitude lors de cet ajustement, par le calcul de l'écart type entre le résidu spectral et le polynôme ajusté.

À noter que le cas présenté dans cette section correspond à une période de bon fonctionnement de l'instrument, et à l'occultation d'une étoile parmi les plus lumineuses. Les incertitudes dans les profils des quantités intégrées (Figures 30, 32 et 34) sont faibles dans cet exemple, mais augmentent généralement pour des étoiles moins lumineuses de magnitude supérieure.



### 3.1.3 Inversion spatiale (ou verticale)

Les produits résultant de l'inversion spectrale sont les quantités intégrées des espèces chimiques,  $QI_i = \int_0^L N_i ds$ , et les épaisseurs optiques tangentes des aérosols,  $\tau(\lambda) = \int_0^L \alpha_{ext} ds$ .

L'inversion spatiale ou verticale permet de retrouver les profils verticaux de concentration de chaque espèce chimique et le profil d'extinction des aérosols. Pour cela, la méthode employée est une inversion par régression linéaire par moindres carrés, basée sur l'hypothèse de symétrie sphérique; ceci implique l'approximation à des couches homogènes en concentration sur l'épaisseur et sur la distance de la ligne de visée. Le nombre de couches est établi en fonction du nombre de mesures effectuées pendant l'occultation.

La géométrie d'observation est connue avec précision: la position du satellite et celle du point tangent dans la ligne de visée sont fournies dans les produits officiels de GOMOS. On peut donc construire la matrice de parcours optique ( $A$ ), qui contient les longueurs des trajets optiques des rayons lumineux dans chaque couche. On peut alors écrire (Berthet, 2002) :

$$[Q] = [A] [C] \quad (3.12)$$

où  $Q$  est le vecteur contenant les quantités intégrées, et  $C$  le vecteur contenant les concentrations des espèces chimiques. Celles-ci sont donc ajustées dans chaque couche par régression linéaire (fonction REGRESS IDL) entre les valeurs des quantités intégrées et les parcours optiques.

La même méthode est appliquée aux aérosols :

$$[T] = [A] [E] \quad (3.13)$$

où  $T$  est le vecteur contenant les épaisseurs optiques des aérosols à chaque longueur d'onde, et  $E$  est le vecteur contenant les coefficients d'extinction

Le tableau 3-1 montre un exemple d'équivalence entre l'élévation (°) et l'altitude (km), pour l'occultation choisie comme exemple de la chaîne de traitement. L'inversion verticale est interrompue à l'altitude à laquelle le rapport de la valeur sur l'incertitude mentionnée précédemment est inférieur à 1, ce critère s'appliquant à toutes les espèces, y compris les aérosols.

En pratique, comme la contribution de  $\text{NO}_3$  est négligeable et n'est pas soustraite au spectre, l'altitude minimale que l'on peut espérer pour les aérosols est celle où s'arrête en premier l'inversion de l'ozone ou du  $\text{NO}_2$ . Le plus souvent c'est celle de  $\text{NO}_2$  qui impose l'altitude minimale, comme c'est le cas dans l'exemple montré (18 km d'après la Figure 37).

Les Figures 36 et 37 montrent l'ajustement mathématique des quantités intégrées. Celui-ci produit des valeurs positives et négatives au début de l'occultation (c'est à dire à des altitudes élevées), dont la moyenne oscille autour de zéro, et qui sont représentatives de la dispersion des résultats. À droite dans ces figures, des exemples de profils verticaux de chaque espèce montrent des incertitudes comprises entre moins de 1% et 7% pour l'ozone aux altitudes supérieures à 18 km, et atteignent des valeurs de 15% dans le profil vertical de  $\text{NO}_2$ , et plus de 30% dans le profil vertical de  $\text{NO}_3$ .

### 3.1. Description de la méthode d'analyse

Élévation (°)	Altitude (km)	Élévation (°)	Altitude (km)
-26.01	69.74	-26.61	36.70
-26.04	68.24	-26.63	35.25
-26.06	66.73	-26.66	33.81
-26.09	65.23	-26.68	32.39
-26.12	63.72	-26.71	31.01
-26.15	62.21	-26.73	29.65
-26.17	60.70	-26.76	28.34
-26.20	59.20	-26.78	27.10
-26.23	57.68	-26.80	25.94
-26.26	56.17	-26.82	24.86
-26.28	54.66	-26.84	23.83
-26.31	53.15	-26.86	22.85
-26.34	51.64	-26.87	21.92
-26.36	50.12	-26.88	21.04
-26.39	48.61	-26.90	20.22
-26.42	47.10	-26.91	19.48
-26.45	45.59	-26.93	18.86
-26.47	44.09	-26.93	18.33
-26.50	42.59	-26.95	17.83
-26.53	41.09	-26.95	17.35
-26.55	39.61	-26.96	16.82
-26.58	38.15	-26.97	16.15

Tableau 3-1. Exemple d'équivalence élévation-altitude dans l'intervalle montré dans les figures précédentes, pour l'occultation de l'étoile S0004 le 11 mars 2004, à 9°N de latitude.

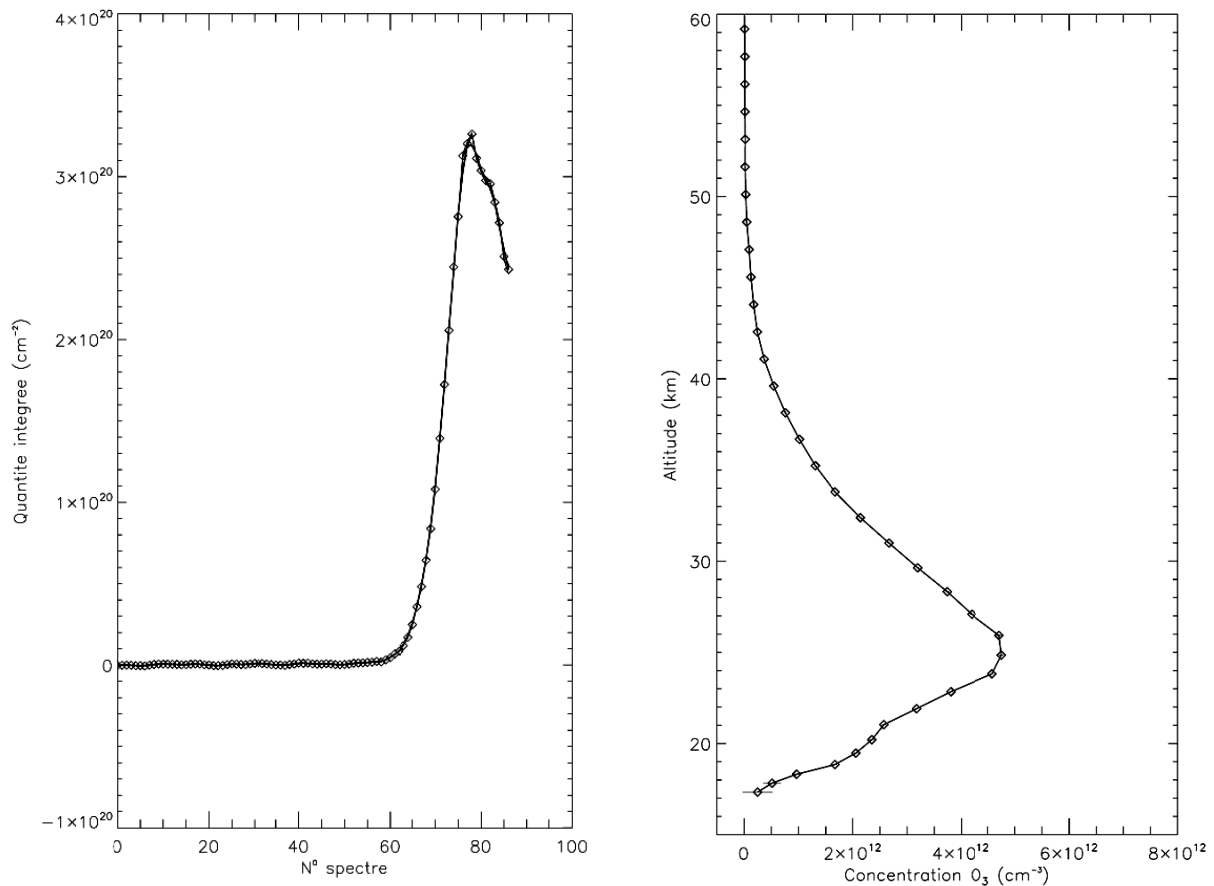


Figure 36. L'inversion spatiale des quantités intégrées de O<sub>3</sub> (gauche) donne le profil vertical de concentration (droite), où chaque point correspond à une ligne de visée (ajustement en trait plein). L'échantillonnage vertical augmente vers les plus basses altitudes à cause de la réfraction (section 2.3.3.1 page 60). Exemple pour la même occultation que dans les figures précédentes.

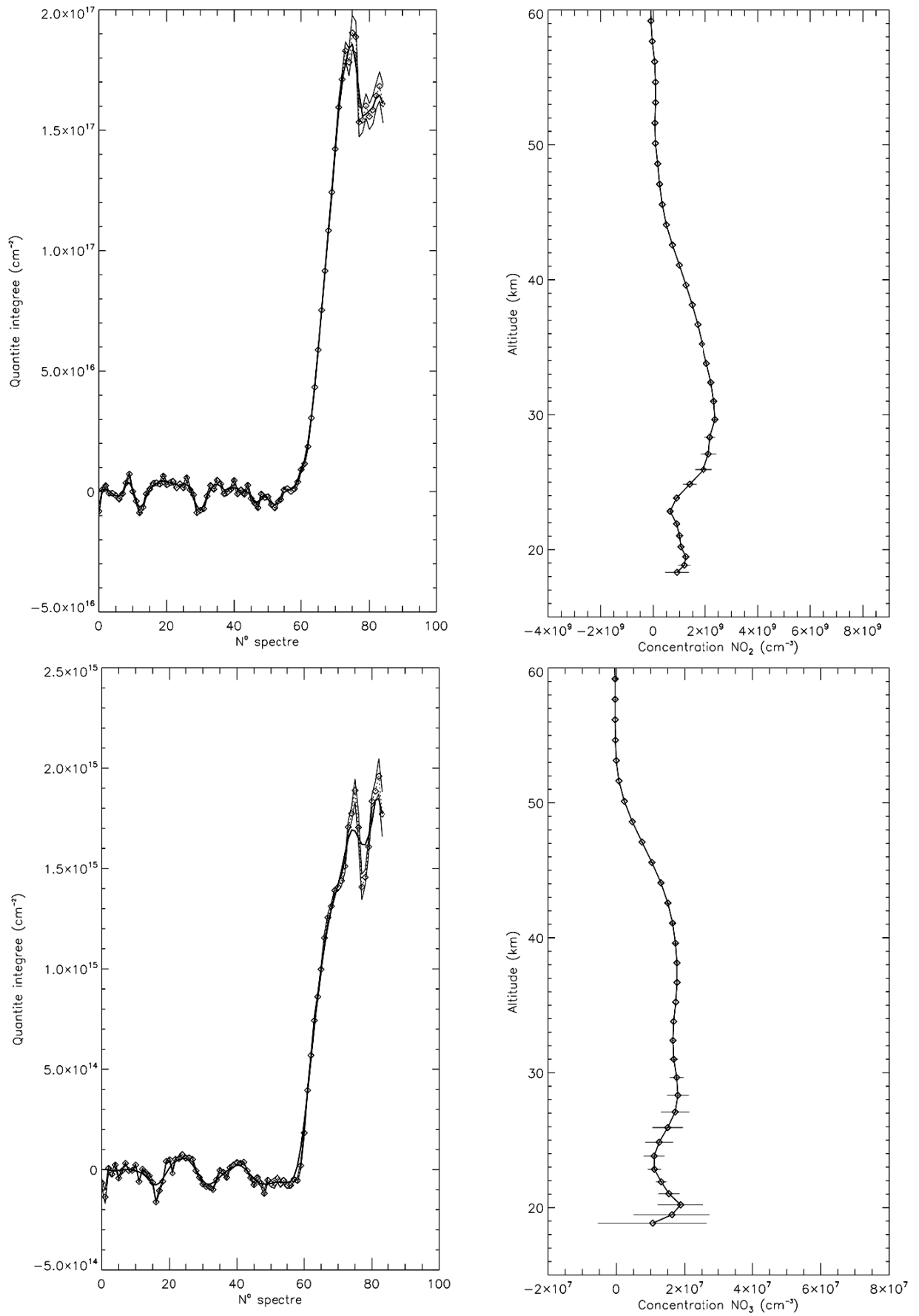


Figure 37. Exemple d'inversion spatiale de  $\text{NO}_2$  (haut) et de  $\text{NO}_3$  (bas), pour la même occultation que dans les figures précédentes.

La Figure 38 montre le profil vertical d'extinction des aérosols qui résulte de l'inversion verticale. Les barres d'incertitude, qui sont calculées à partir des déviations standard entre l'ajustement mathématique polynomial et le spectre résiduel GOMOS après soustraction des contributions des espèces chimiques, ne sont pas montrées ici pour des raisons de visibilité (voir Figures dans pages 113 et 114), mais sont très variables et oscillent entre moins de 1% et plus de 30% dans les zones de très faible signal.

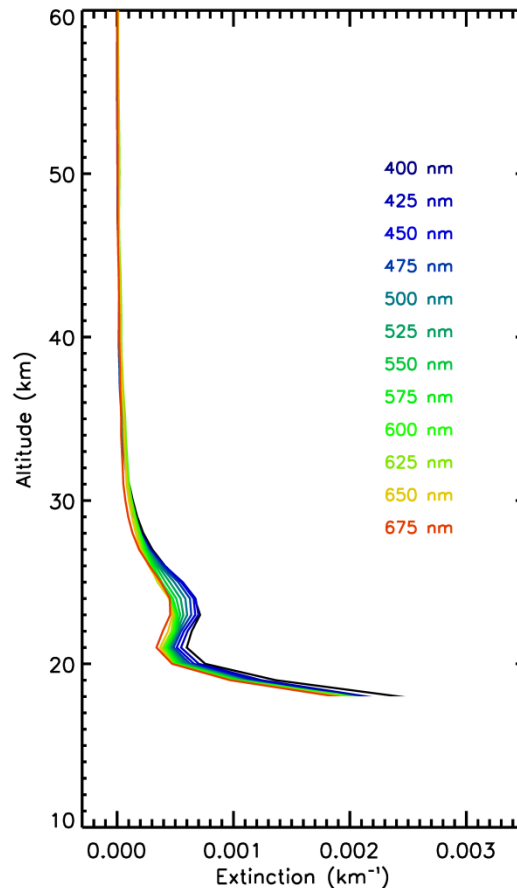


Figure 38. Profil vertical d'extinction d'aérosols, montrant la dépendance spectrale. Sont tracées les longueurs d'onde de 400 nm à 675 nm, tous les 25 nm, pour la même occultation que dans les figures précédentes.

À partir des profils verticaux d'ozone, de  $\text{NO}_2$  et de  $\text{NO}_3$ , des valeurs moyennes journalières ont été calculées par interpolation des valeurs de concentration (une valeur tous les kilomètres), et en moyennant les profils par bandes de  $20^\circ$  de latitude, entre  $90^\circ\text{N}$  et  $90^\circ\text{S}$ .

Ces résultats ont été utilisés dans l'élaboration d'une climatologie pour la période allant d'août 2002 à juillet 2006, et qui est présentée en annexe. Les Figures A1 à A3 montrent la variation temporelle de la concentration moyenne d'ozone par jour, entre 15 et 60 km d'altitude. Les Figures A4 à A6, et A7 à A10 présentent respectivement la variation temporelle des concentrations de  $\text{NO}_2$  et de  $\text{NO}_3$ , entre 25 et 60 km d'altitude. Dans tous les cas une moyenne glissante est appliquée sur trois jours.

## 3.2 Critères de sélection

Lors de l'analyse individuelle des profils d'extinction -obtenus avec l'algorithme officiel ou avec l'algorithme du LPC2E-, la nécessité d'un critère de sélection est évidente du fait de la grande variabilité du bruit des spectres au début du traitement. Cependant, des profils issus d'occultations d'étoiles de magnitude relativement faible montrent que leur qualité n'est pas nécessairement uniquement liée à la brillance de l'étoile (Figure 39). En effet, les différences de rayonnement stellaire sont parfois notables dans les limites spectrales de GOMOS (dans les domaines UV et IR), alors qu'elles ont moins d'importance dans le domaine visible. Ainsi, il a été décidé de ne pas établir de critère a priori sur la brillance de l'étoile, mais de faire en sorte d'estimer le rapport signal sur bruit des mesures à partir des valeurs de l'extinction et de son incertitude, rendant possible aussi l'élimination de produits de mauvaise qualité en raison d'autres facteurs, tels que des problèmes instrumentaux liés au pointage.

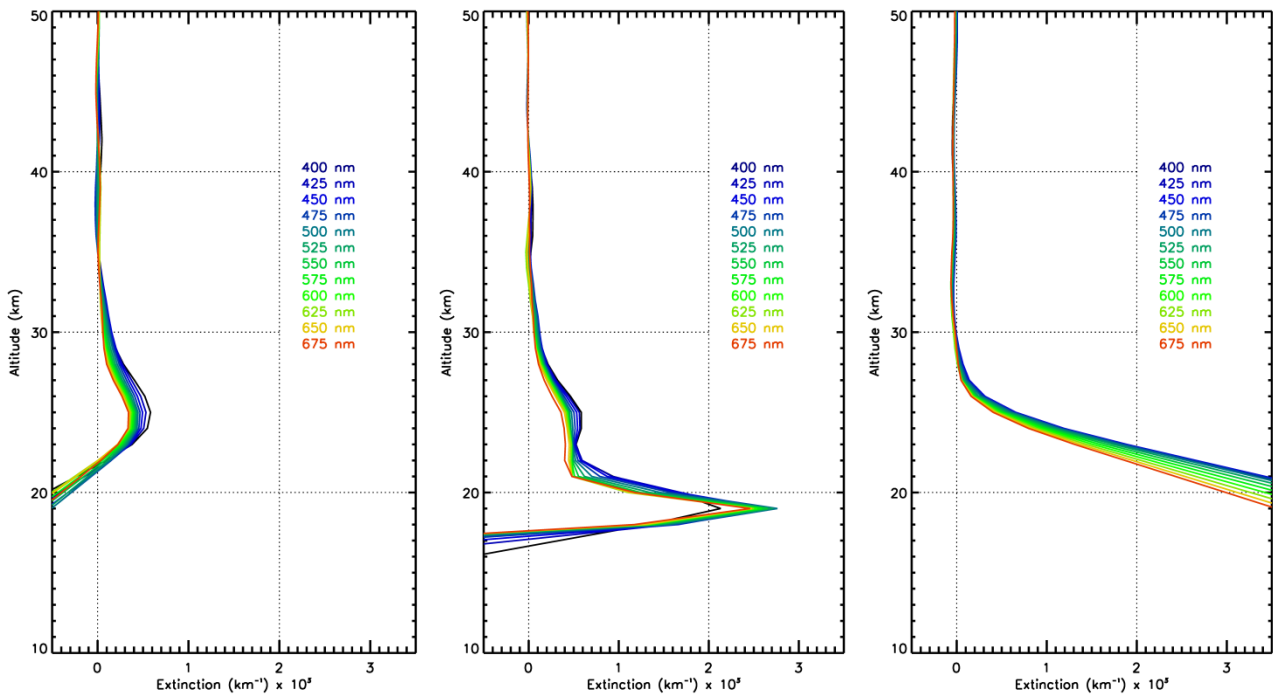


Figure 39. Exemple de profils individuels de bonne qualité obtenus après analyse avec l'algorithme du LPC2E lors d'occultations d'étoiles de faible brillance. À gauche, profil du 29 décembre 2002, à 14°N, 121°W, magnitude 2,25. Au milieu, profil du 10 décembre 2002, 7°S, 172°E, magnitude 2,69. À droite, profil du 18 juillet 2003, 70°S, 119°W, magnitude 2,58. La dépendance spectrale est tracée pour les longueurs d'onde allant de 400 à 675 nm (valeurs d'extinction multipliées par  $10^3$ ).

Un critère de sélection a donc d'abord été établi ayant pour but de garder les profils avec un bon rapport entre les valeurs d'extinction et l'incertitude calculée lors de l'inversion par moindres carrés. Cette estimation se fait par le calcul de l'écart-type dans une bande d'altitudes donnée; ce même critère est appliqué aux profils de niveau 2 issus du traitement officiel et aux profils déduits par l'algorithme du LPC2E. Pour ces derniers, deux critères additionnels ont été mis au point. Les critères s'appliquent donc à différentes étapes du traitement, et concernent les profils d'extinction des aérosols aussi bien que les profils de concentration d'ozone.

### 3.2.1 Critère sur l'écart type

L'écart type ( $\sigma$ ) sert à estimer la dispersion d'une série de  $n$  valeurs d'extinction ( $Ext$ ) autour de leur moyenne ( $\overline{Ext}$ ) :

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{(Ext - \overline{Ext})^2}{n - 1}} \quad (3.14)$$

Une série de points dans un profil d'extinction provenant du traitement d'un signal bruité présente un écart type élevé, car les ajustements lors de l'inversion donneront d'importantes incertitudes, du fait des variations de signal qui n'ont pas de signification physique.

Ce premier critère de sélection consiste donc à établir les valeurs maximales de  $\sigma$  qui ne peuvent être dépassées dans certaines conditions. Il a été développé en analysant un par un tous les profils d'extinction issus du traitement avec l'algorithme officiel et avec l'algorithme du LPC2E, pour différents jours représentatifs de diverses situations du contenu en aérosols.

L'écart type de l'extinction est calculé pour différentes bandes d'altitude dans lesquelles le signal est faible, de 90 à 110 km, et de 60 à 75 km. En absence d'aérosols l'extinction et son écart type devraient être proches de zéro; dans le cas contraire, les oscillations peuvent résulter du bruit initial des spectres ou de la méthode d'inversion, mais ne peuvent être la conséquence de variations réelles du contenu en aérosols. L'écart type est également calculé pour une bande d'altitudes de plus fort signal allant de 20 à 40 km (Tableau 3-2), zones où les concentrations d'aérosols sont variables et dans lesquelles le critère est plus permissif. Différentes longueurs d'onde ont été prises en compte, car il arrive souvent qu'une partie du domaine visible soit bruitée, mais pas le reste.

	$\sigma_1$	$\sigma_2$	$\sigma_3$	$\sigma_4$	$\sigma_5$	$\sigma_6$	$\sigma_7$	$\sigma_8$	$\sigma_9$
Altitude (km)	60-75	90-110	60-75	90-110	60-75	90-110	20-40	20-40	20-40
$\lambda$ (nm)	500	500	400	400	700/600	700/600	500	400	700/600

Tableau 3-2. Altitudes et longueurs d'onde auxquelles est calculé l'écart type.

La technique de mesure et le propos de l'étude présentent deux contraintes: il est question de détecter les plus faibles valeurs d'extinction, mais les profils verticaux présentent des valeurs d'incertitude variables. Il a donc fallu trouver le meilleur compromis qui permette de sélectionner le plus grand nombre de profils, en conservant une bonne sensibilité. Le critère de sélection expose les conditions suivantes :

- Pour les six valeurs d'écart type où le signal est faible ( $\sigma_1$  à  $\sigma_6$ ), il ne peut y avoir plus de 3 valeurs avec  $\sigma > 9 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$ .
- Pour des altitudes où le signal est plus important ( $\sigma_7$ ,  $\sigma_8$  et  $\sigma_9$ ) les valeurs doivent être inférieures à  $9 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$ .

La seule différence entre le traitement des produits officiels et ceux issus du traitement par l'algorithme du LPC2E est une des longueurs d'onde à laquelle le critère est appliqué: le domaine spectral étant restreint dans l'algorithme du LPC2E, la valeur de 700 nm a été remplacée par celle de 600 nm.

### 3.2.2 Critère sur l'altitude minimale de l'ozone

Lors du traitement des produits de niveau 1b avec l'algorithme du LPC2E, la mise en place d'un critère de sélection concernant l'ozone est possible étant donné que les profils individuels des espèces chimiques font partie de la chaîne de traitement. Le critère concerne l'altitude minimale atteinte lors de l'inversion, qui doit être au moins de 25 km (de sorte que le profil d'extinction des aérosols puisse être tracé au moins jusqu'à cette altitude).

### 3.2.3 Critère additionnel

Après analyse des résultats obtenus par le traitement avec l'algorithme du LPC2E pour l'année 2004, un problème survient et se traduit par de fortes variations de l'extinction, qui apparaissent à des périodes spécifiques :

4-25 février
25 mars-20 avril
16 juin-5 juillet
15 juillet-12 août
9 septembre-5 octobre
1-28 décembre

Tableau 3-3. Périodes en 2004 qui présentent une anomalie dans les valeurs d'extinction.

Ces phénomènes impliquent des augmentations et diminutions soudaines des valeurs d'extinction entre 30 km et 50 km sur des périodes d'environ un mois, et apparaissent au même moment à toutes les latitudes de la climatologie. Un exemple est donné dans la Figure 40 pour les valeurs d'extinction à 500 nm comprises entre 30° et 10°N :

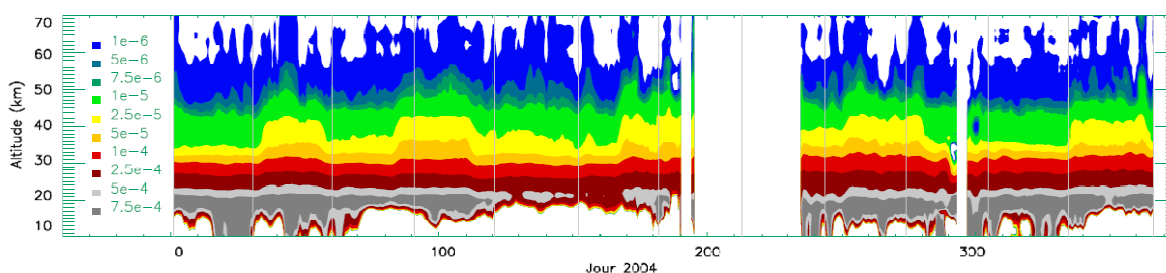


Figure 40. Extinction à 500 nm entre 10 et 70 km pour l'année 2004, entre 30 et 10°N. Les artéfacts se présentent sous la forme d'augmentations de l'extinction pour des valeurs inférieures à  $5 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  (orange, jaune et vert), et sont visibles pour les périodes recueillies dans le Tableau 3-3.

En ré-analysant les profils individuels des espèces chimiques, il s'est avéré que la majorité des profils verticaux d'ozone correspondants à ces mêmes périodes présentaient d'importantes incertitudes entre 30 et 40 km (Figure 41). N'étant pas au courant de problèmes inhérents à l'instrument signalés à ces dates, nous n'avons pu en déterminer la cause.

La Figure 42 montre un exemple d'ajustement semi-DOAS pour un de ces cas.

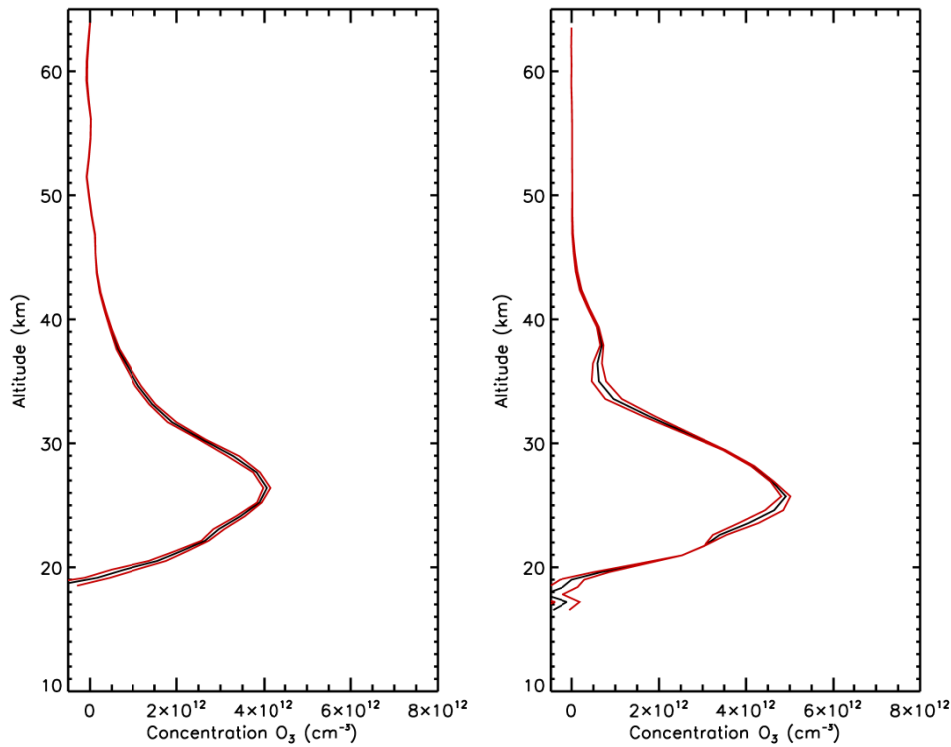


Figure 41. Exemple de profils verticaux d'ozone (trait noir) et incertitude de l'ajustement (trait rouge) pour le 20 février 2004, à 0 et 15°N de latitude, orbite 10329. Le profil à gauche (étoile de magnitude 0,77) satisfait le critère de sélection, contrairement au profil de droite (magnitude -0,01). La magnitude de l'étoile ne peut donc pas être la cause de l'erreur.

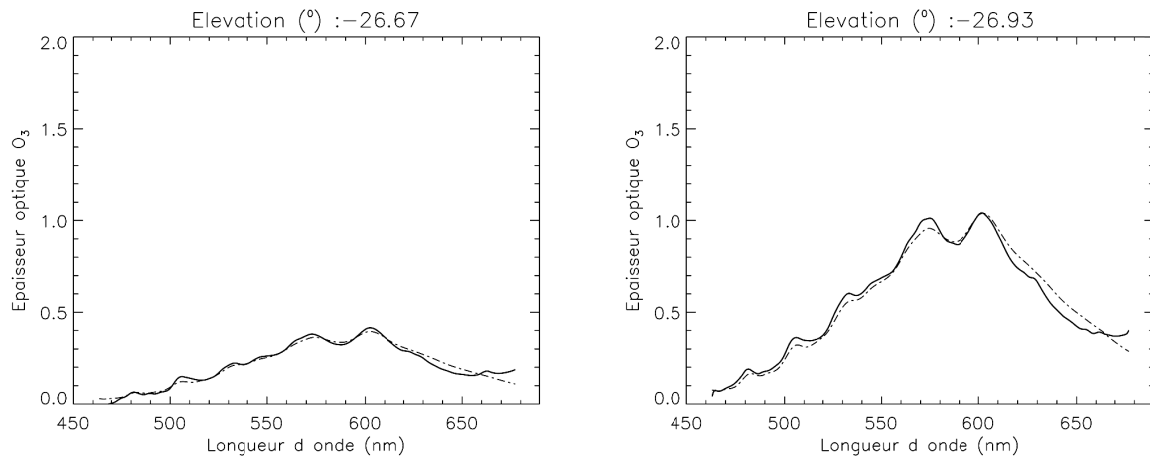


Figure 42. Inversion spectrale de l'ozone pour l'occultation d'une étoile de magnitude -0,01, à 15° N de latitude, le 20 février 2004. Altitude autour de 18 km (gauche) et 32 km (droite). L'ajustement mathématique des sections efficaces (pointillés) ne reproduit pas le signal mesuré.



La qualité des produits d'ozone est essentielle étant donné qu'il s'agit de l'espèce qui présente la plus grande contribution d'absorption dans les spectres de transmission. Si le profil d'ozone est peu précis, la chaîne de traitement puis l'ajustement du spectre résiduel par le polynôme de quatrième degré amplifient les incertitudes dans l'estimation de l'extinction des aérosols. L'apparition de ces effets artificiels a motivé la mise en place d'un nouveau critère de sélection. Les valeurs d'incertitude qui résultent de l'ajustement du spectre par les sections efficaces sont calculées entre 30 et 40 km. Parmi les 11 valeurs interpolées :

- au maximum huit peuvent avoir une incertitude supérieure à  $1,65 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ,
  - quatre une incertitude supérieure à  $3,8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ,
  - trois une incertitude supérieure à  $4,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ ,
- et seulement une d'entre elles peut avoir une incertitude supérieure à  $6,3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ .

Ces valeurs ont été choisies de façon empirique, en analysant les profils de concentration d'ozone à différentes périodes.

Bien que l'application de ce critère implique des périodes de faible couverture temporelle, la qualité des résultats a été privilégiée en dépit de la continuité des données pour l'année 2004.

### 3.3 Validation de la méthode d'analyse

L'algorithme du LPC2E a déjà été employé pour l'analyse de certains profils de GOMOS en utilisant l'étoile Sirius (de magnitude -1,44) comme source lumineuse, en coïncidence avec des mesures ballons à Kiruna en janvier 2006 (Renard et al., 2008b). Cependant, la validation de la méthode décrite ici concerne le traitement d'un grand nombre de données pour de longues périodes, et constitue une approche différente car des étoiles de faible magnitude sont utilisées, et une grande quantité de profils sont moyennés avant d'obtenir le résultat final.

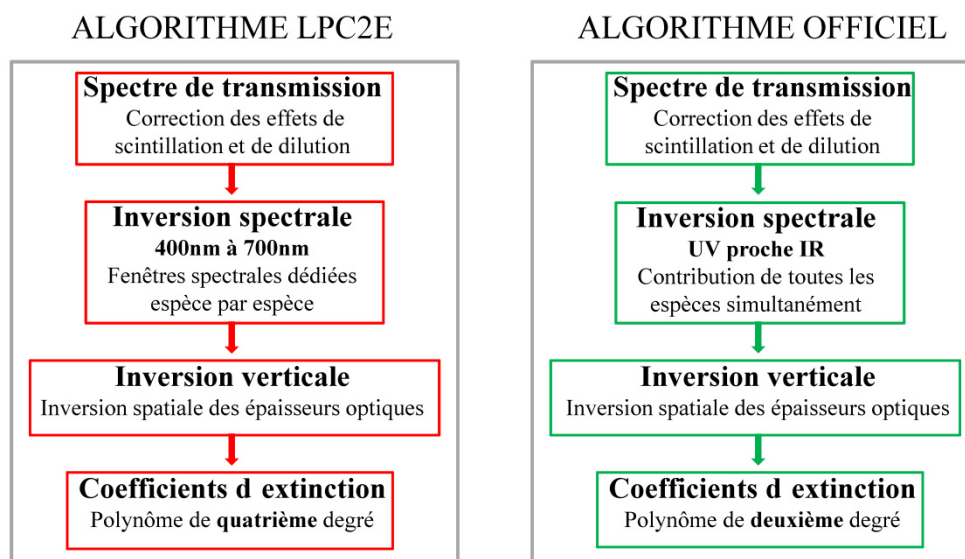


Figure 43. Schéma récapitulatif des principales différences entre l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel.

Pour évaluer l'efficacité de cette méthode, les données de niveau 2 issues du traitement avec la version 5.0 (section 3.3.1) ou 6.0 (section 3.3.2) de l'algorithme officiel ont été comparées aux produits issus des données de niveau 1b traitées avec l'algorithme du LPC2E.

Les principales différences entre les deux méthodes lors de l'inversion (Figure 43) sont la restriction du domaine spectral au domaine visible pour l'algorithme du LPC2E (page 67), la correction de l'effet de scintillation (page 68) et l'utilisation d'un polynôme de degré 4 pour l'ajustement de l'extinction des aérosols (page 76).

#### 3.3.1 Comparaison directe

Dans cette section sont comparés les produits issus de l'algorithme du LPC2E aux produits officiels de niveau 2 issus de la version 5.0 de l'algorithme officiel, auxquels ont été appliqués les critères de sélection discutés précédemment, et les mêmes interpolations et moyennes.

Les spécificités de chaque méthode mènent à des différences dans les résultats qui ont été étudiées; les Figures 44 à 46 montrent des exemples de profils individuels (algorithme du LPC2E à gauche, algorithme officiel à droite), et leur variation spectrale dans le visible. Hormis les basses altitudes, que les mesures satellitaires qui utilisent la méthode d'occultation stellaire ne sont pas aptes à reproduire avec une bonne fiabilité, en général la dépendance spectrale et la valeur de l'extinction des aérosols augmentent depuis la moyenne stratosphère jusqu'à la couche de Junge, où les valeurs d'extinction sont maximales. Les profils issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E sont plus lisses dans tous les cas, et libres des oscillations anormales présentes dans les produits officiels comme celles qui apparaissent dans la Figure 45b à 50, 42 et 39 km. Ces structures oscillantes pourraient indiquer une dépendance spectrale biaisée dans certains cas, et ceci à cause de l'utilisation de la région UV du spectre de transmission qui est assez bruitée, et de l'ajustement par un polynôme de deuxième degré.

Il existe souvent une bonne corrélation entre l'altitude d'extinction maximale retrouvée avec les deux produits, comme le montrent les Figures 46a et 46b, où elle se situe respectivement à 22 km et vers 18-19 km. Cependant, les concordances peuvent être très disparates aux différentes longueurs d'onde. Par exemple, dans la Figure 45a, les valeurs d'extinction aux longueurs d'onde supérieures ont des valeurs très faibles dans le produit issu du traitement par l'algorithme officiel, là où elles atteignent des valeurs d'approximativement  $7 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  pour l'algorithme du LPC2E. Les différences à 18 km sont supérieures à 80% à 675 nm, alors qu'elles sont d'environ 1% pour 400 nm à la même altitude.

Une particularité que l'on retrouve dans certains profils issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E sont les valeurs d'extinction maximales autour de 30 km d'altitude à des longueurs d'onde autour de 600 nm dans certains cas (Figures 44b et 46b). Comme il sera montré dans le Chapitre 4, ce comportement est probablement lié à la présence d'aérosols solides. L'algorithme du LPC2E est apte à reproduire des effets de couleur de la sorte, car le degré du polynôme est adéquat pour modéliser les variations produites par les faibles signaux qui apparaissent dans la moyenne stratosphère. Cependant, il est important de noter que dans la Figure 46b, cet effet est reproduit également par l'algorithme officiel.

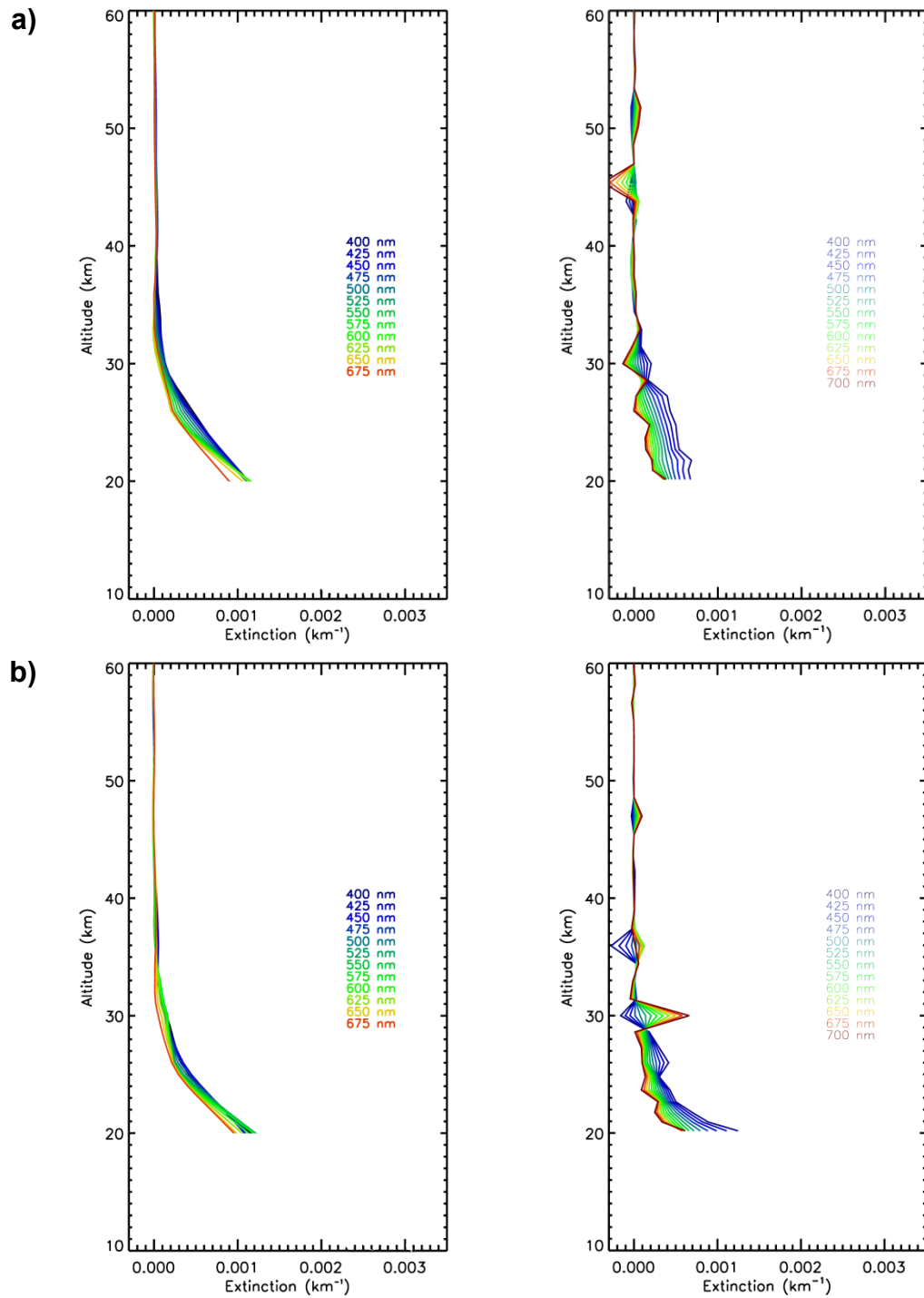


Figure 44. Profils individuels d'extinction d'orbites successives issus de l'algorithme du LPC2E (gauche) et de l'algorithme officiel (droite), datant du 1<sup>er</sup> janvier 2004, à une latitude de 9°N, pour une étoile de magnitude 1,67, à 150°E de longitude (a) et à 125°E (b).

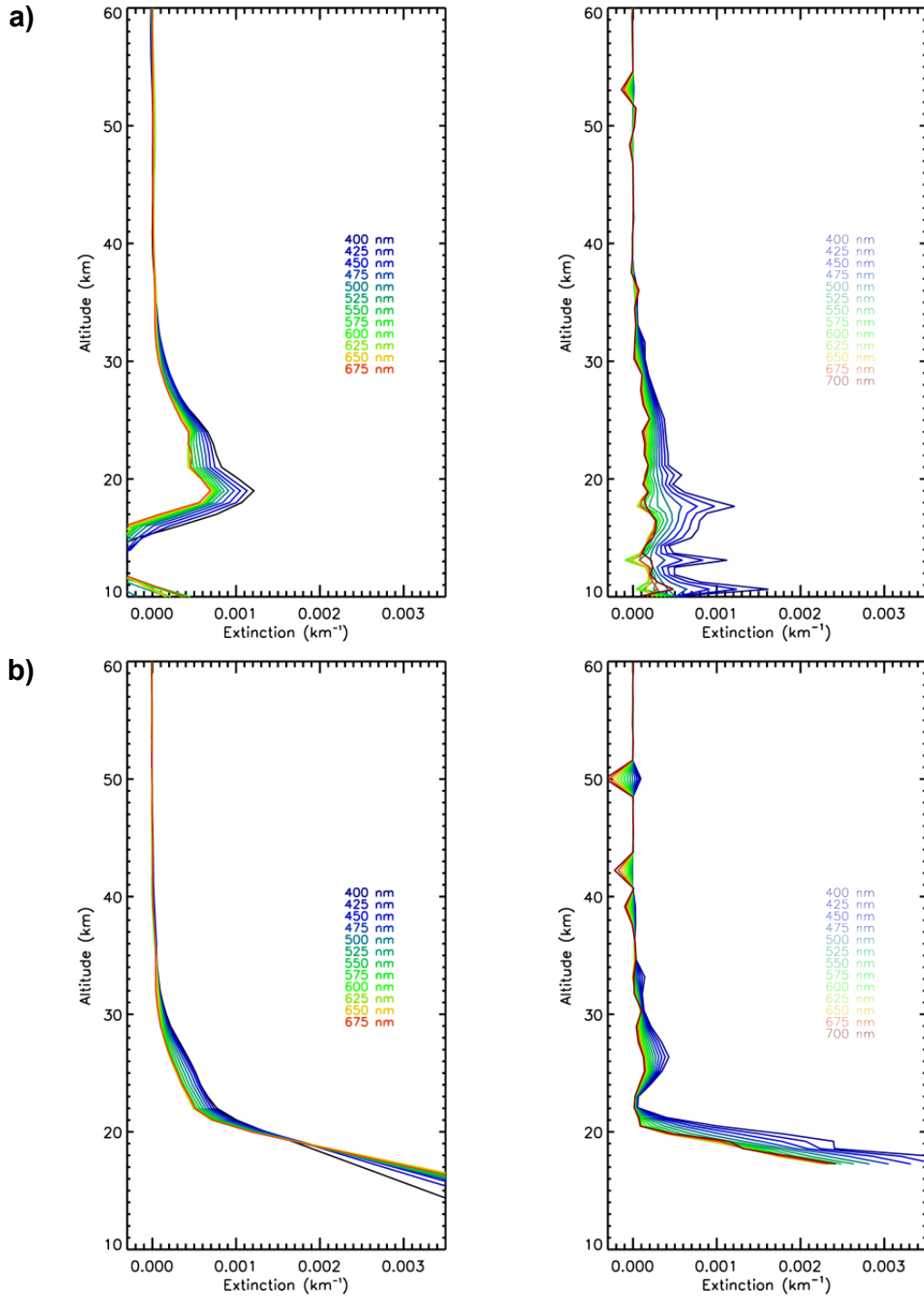


Figure 45. Profils individuels d'extinction issus de l'algorithme du LPC2E (gauche) et de l'algorithme officiel (droite), datant du 1<sup>er</sup> janvier 2004 à 8°S, étoile de magnitude 0,77, à 127°W (a), et 132°E (b).

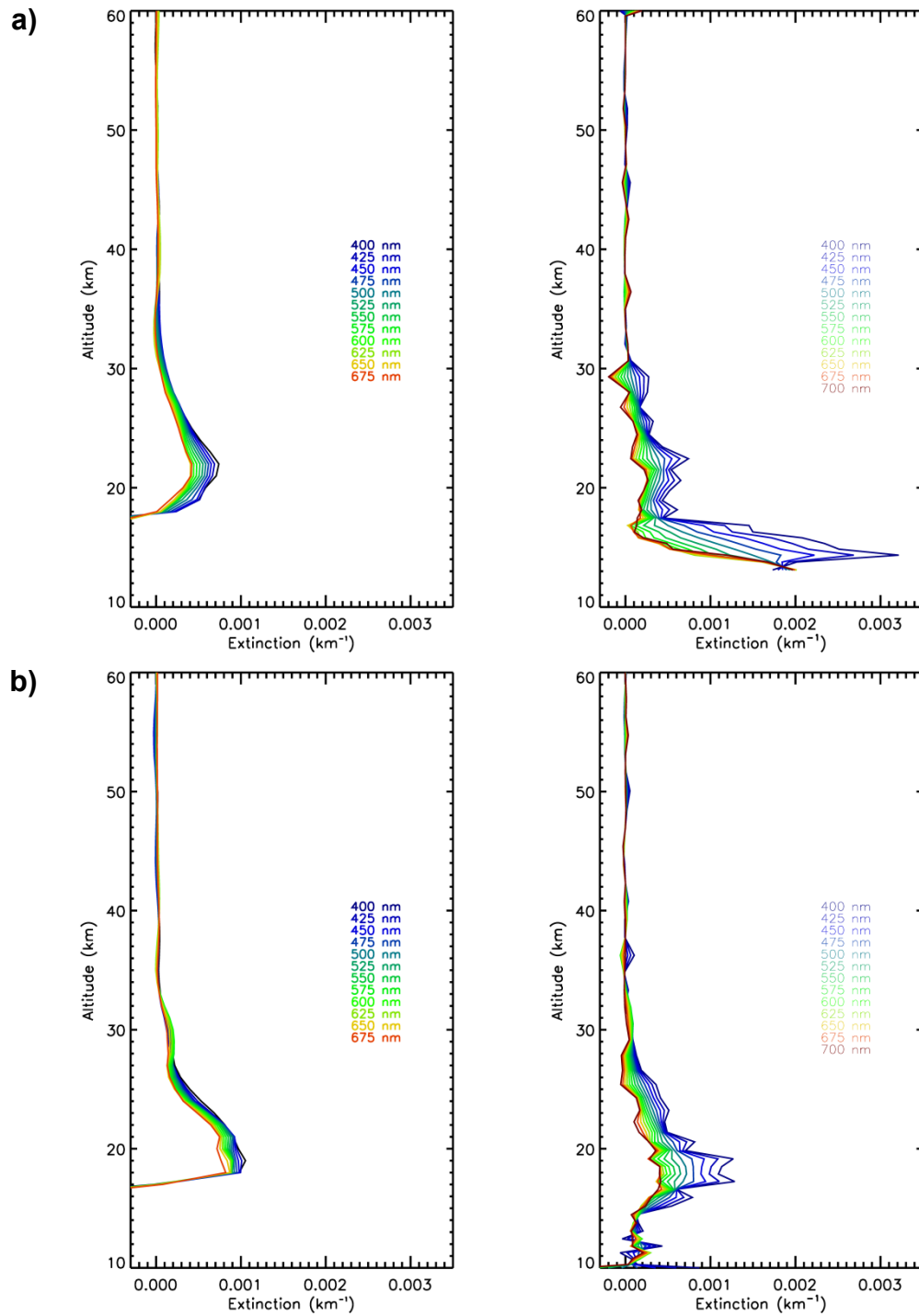


Figure 46. Profils individuels d'extinction issus de l'algorithme du LPC2E (gauche) et de l'algorithme officiel (droite), datant du 1<sup>er</sup> janvier 2004, à 20°N de latitude pour une étoile de magnitude 1,86. Orbite 09607 à 108°W (a), et orbite 09609 à 157°W (b).

Les profils individuels d'extinction ont été interpolés dans une grille constante espacée d'un kilomètre, et moyennés de façon à obtenir un profil journalier par bande de 10° de latitude, entre 90°N-80°N et 80°S-90°S. Des cartes de contours d'extinction sont ensuite tracées, en appliquant une moyenne glissante sur trois jours consécutifs, et montrent la variation temporelle en fonction de l'altitude.

Les Figures 47 à 50 montrent plusieurs exemples de ces cartes d'extinction à 500 nm, et présentent la variabilité temporelle des résultats obtenus à partir de chaque algorithme (LPC2E ou officiel dans sa version 5.0, avec le même critère sur l'écart type de l'estimation de l'extinction appliqué aux deux méthodes) pour l'année 2003, entre 10 km et 70 km d'altitude.

Pour une vision globale des différences relatives entre les deux méthodes, celles-ci sont calculées d'après l'équation suivante :

$$Dif(\%) = 2 \times \frac{Ext_{LPC2E} - Ext_{OFFICIEL}}{Ext_{LPC2E} + Ext_{OFFICIEL}} \times 100 \quad (3.15)$$

et tracées pour les mêmes périodes. L'échelle de couleur dans les figures varie de  $1 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$  (bleu) à  $2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$  (gris) pour les extinctions, et de -100% (bleu) à 100% (gris) pour les différences relatives.

D'après ces résultats, la limite de détection dans les produits officiels semble être atteinte au-dessus de 30 km aux latitudes polaires (page 91), et entre 30 km et 40 km aux moyennes latitudes et aux tropiques (page 92), exceptées des situations particulières, comme celle qui apparaît dans la Figure 47 en août 2003, lorsqu'est observée une augmentation soudaine des valeurs d'extinction (section 4.6.1) au nord de 70° de latitude à partir du traitement par les deux méthodes (les valeurs issues du traitement avec l'algorithme du LPC2E sont ici supérieures, pour des différences qui varient de 0 à 40% entre 30 et 60 km d'altitude).

Pour les produits issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E, les limites de détection se situent au-delà de 50 km à toutes les latitudes, sauf en situation d'hiver polaire, moment auquel les valeurs d'extinction diminuent drastiquement au-dessus de 30 km (LPC2E) et de 28 km (officiel), caractéristique décrite dans la section 4.5.1 (page 147).

Les zones de meilleur accord entre les deux méthodes se situent entre 15 km et 25 km dans la plupart des cas (environ 20 km et 40 km aux tropiques), avec un pourcentage de concordance très variable, mais qui est compris entre -40% et 40% dans la plupart des cas.

Aux altitudes inférieures à 20 km, peu de données sont disponibles avec les produits issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E, du fait de l'utilisation du critère d'arrêt de l'inversion spectrale et de l'inversion spatiale lorsque le rapport entre la mesure de l'extinction et l'estimation de l'incertitude est inférieur à 1. Comme il sera discuté dans le Chapitre 4, ce critère perturbe par exemple le suivi continu de l'évolution du contenu de nuages stratosphériques polaires, l'étude statistique d'apparition de forts signaux dus à la présence de nuages cirrus, ou le suivi du contenu dans le réservoir tropical.

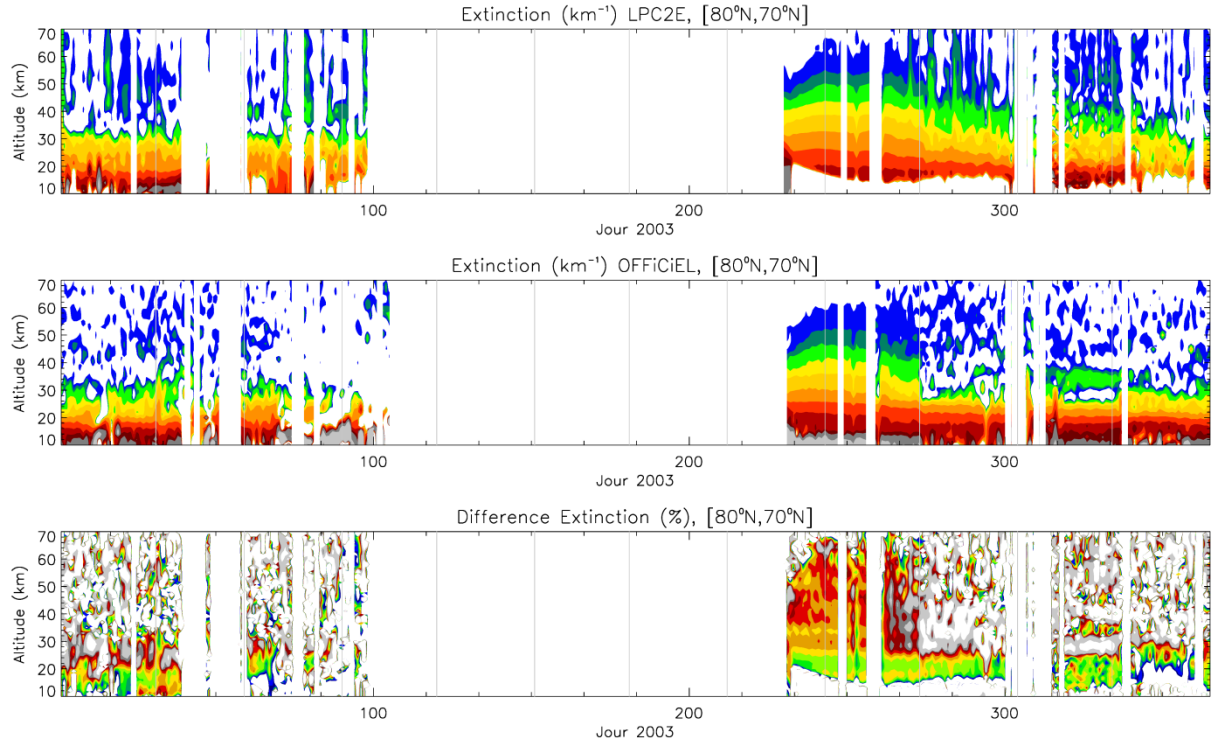


Figure 47. Extinction à 500 nm d'après algorithme du LPC2E (haut) et algorithme officiel (milieu), et différence en % (bas), pour des latitudes comprises entre 80°N et 70°N, en 2003.

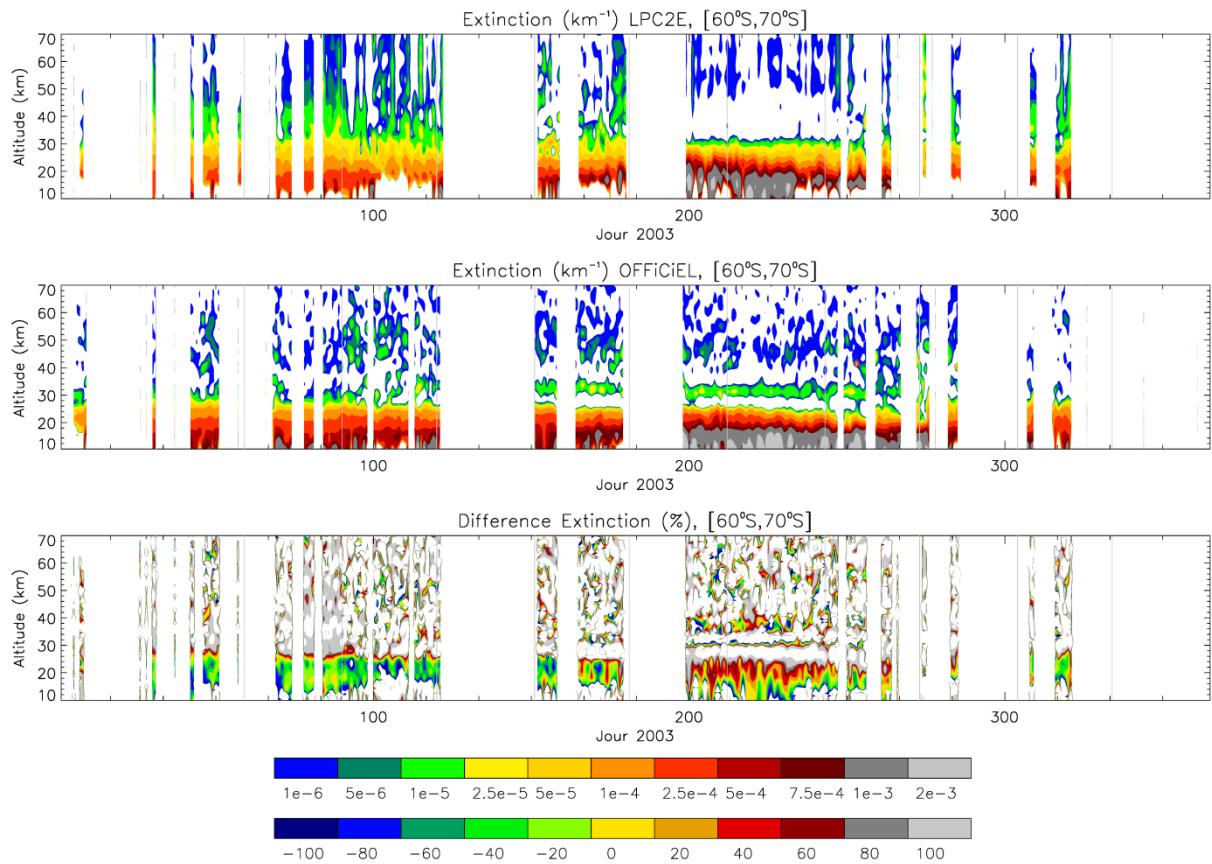


Figure 48. Extinction à 500 nm d'après algorithme du LPC2E (haut) et algorithme officiel (milieu), et différence en % (bas), pour des latitudes comprises entre 60°S et 70°S, en 2003.



### 3.3. Validation de la méthode d'analyse

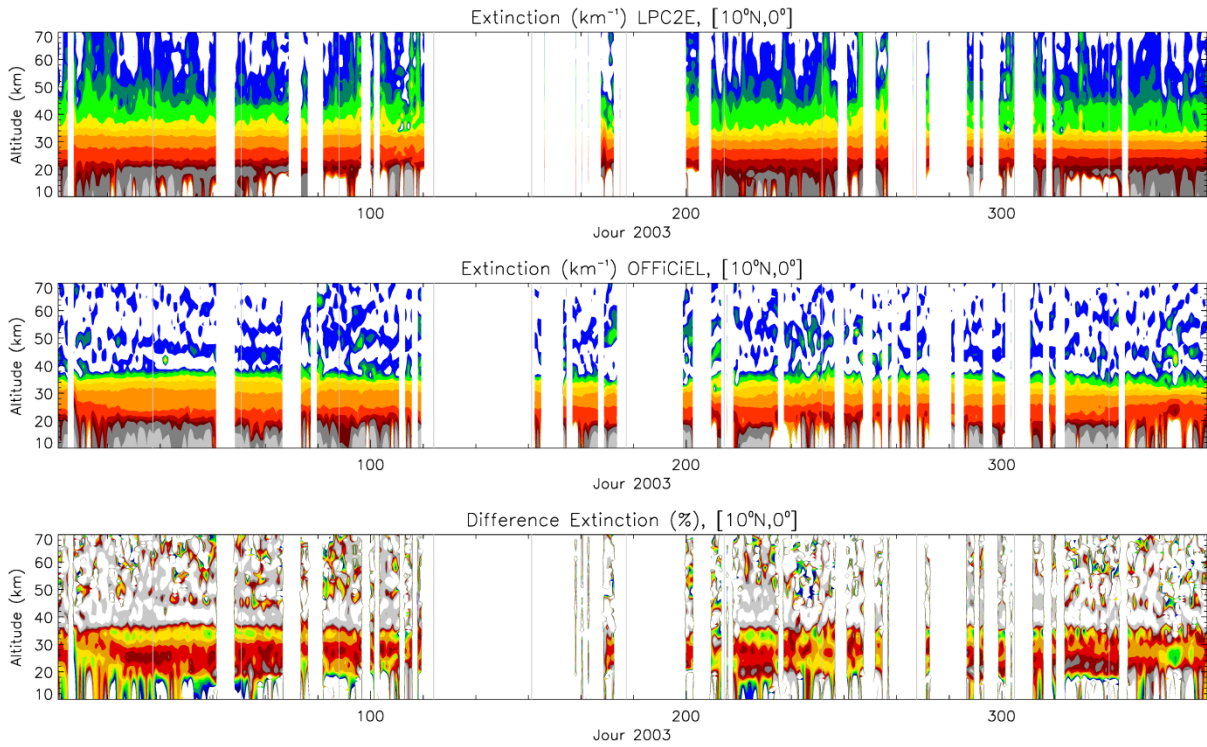


Figure 49. Extinction à 500 nm d'après algorithme du LPC2E (haut) et algorithme officiel (milieu), et différence en % (bas), pour des latitudes comprises entre 0 et 10°N, en 2003.

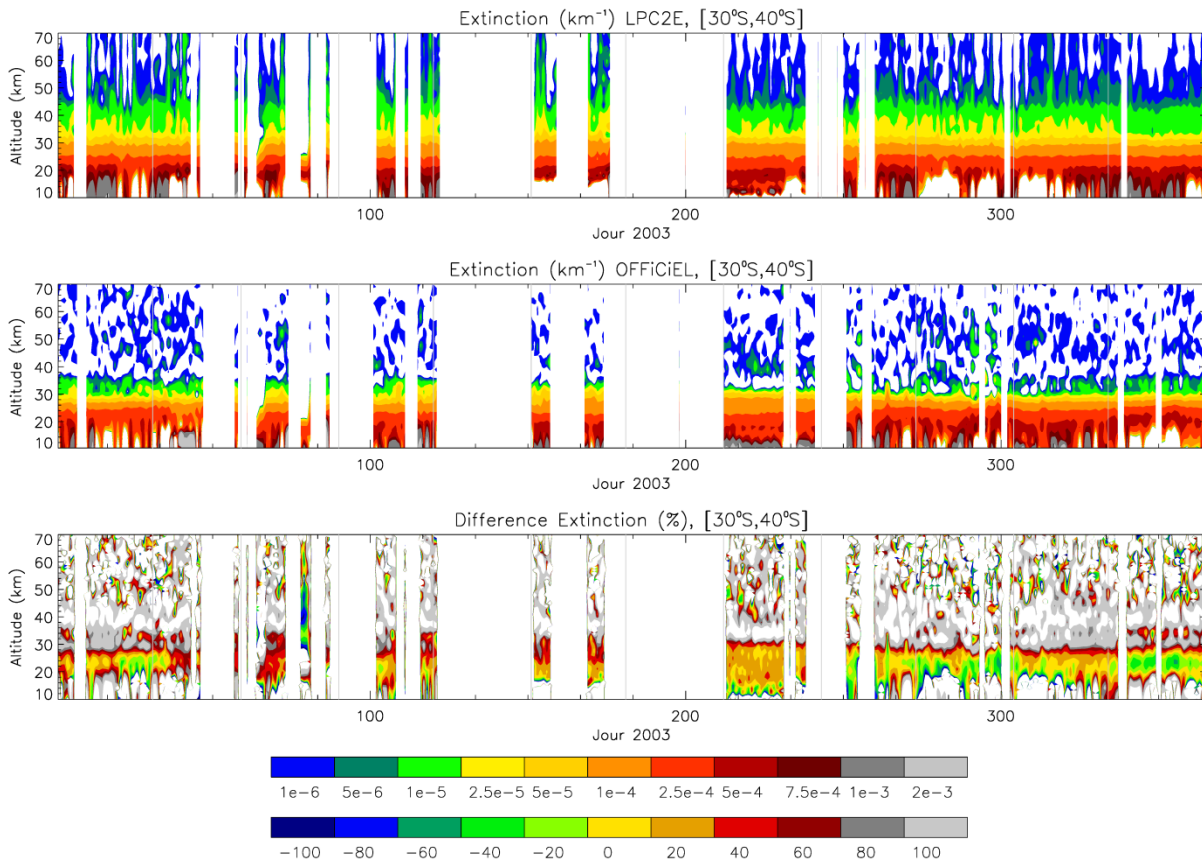


Figure 50. Extinction à 500 nm d'après algorithme du LPC2E (haut) et algorithme officiel (milieu), et différence en % (bas), pour des latitudes comprises entre 30°S et 40°S, en 2003.



### 3.3.2 Comparaison à d'autres produits

Dans cette section, les résultats issus de la méthode utilisée (traitement avec l'algorithme du LPC2E et tri des données par les critères de sélection décrits dans la section précédente) ont été comparés aux données GOMOS officielles de niveau 2 dans leur version 6.0, et aux données SAGE III dans leur version 3.0 (valeurs d'extinction à 521 nm), toutes deux récupérées à partir de la base de données PROMOTE :

<http://stratospheric-aerosols.aeronomy.be/>

Les Figures 51 à 57 montrent les valeurs d'extinction à 500 nm entre 10 km et 50 km pour GOMOS (LPC2E et PROMOTE), et à 521 nm entre 10 et 40 km pour SAGE III, pour la période allant d'août 2002 à juillet 2006, et pour des bandes de 10° de latitude. À noter que les données PROMOTE sont disponibles sous la forme d'une valeur médiane par mois et par kilomètre, alors que lors du traitement avec l'algorithme du LPC2E, les moyennes journalières sont d'abord calculées, et au moins 7 de ces valeurs sont requises pour obtenir une valeur moyenne mensuelle (de sorte que l'échantillonnage considéré représentatif d'un mois ne puisse être inférieur à l'équivalent d'une semaine).

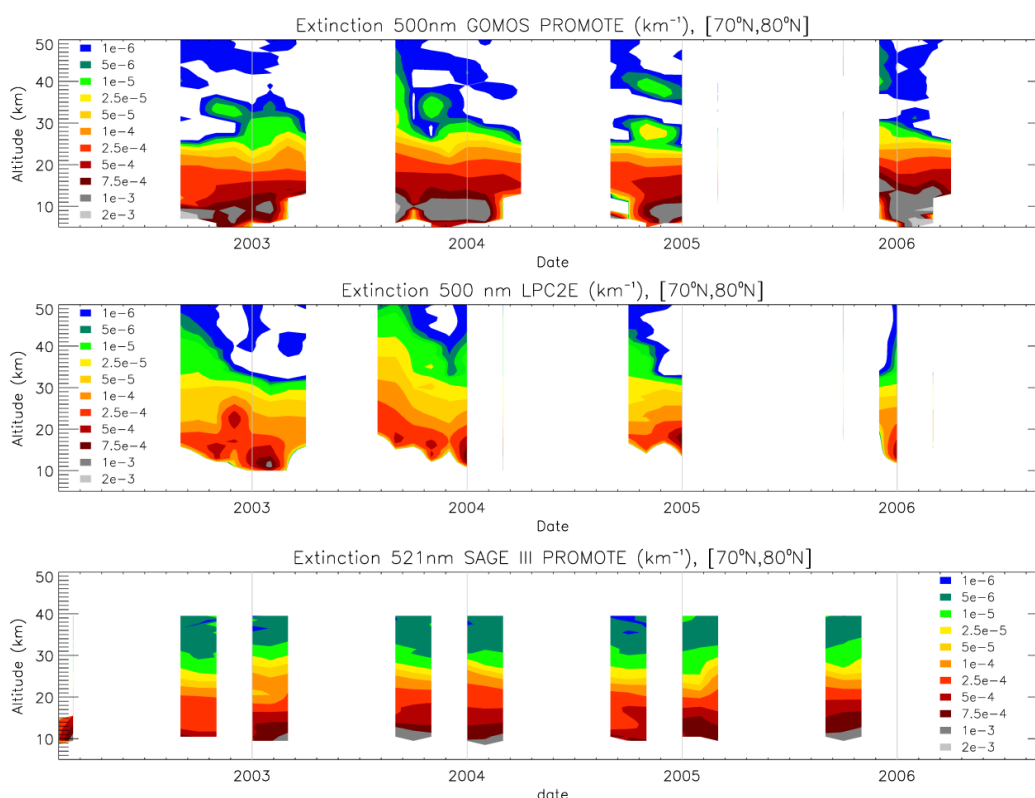


Figure 51. Valeurs moyennes mensuelles (LPC2E) et médianes (PROMOTE) de l'extinction aux latitudes comprises entre 80°N et 70°N pour la période allant d'août 2002 à juillet 2006. Le contour du haut représente l'extinction GOMOS à 500 nm par traitement avec la version 6.0 de l'algorithme officiel, tracée à partir des données PROMOTE. Au milieu, extinction GOMOS à 500 nm après traitement avec algorithme du LPC2E, et application des différents critères de sélection. En bas, valeurs d'extinction à 521 nm par traitement avec la version 3.0 des produits SAGE III, disponibles également dans la base de données PROMOTE.

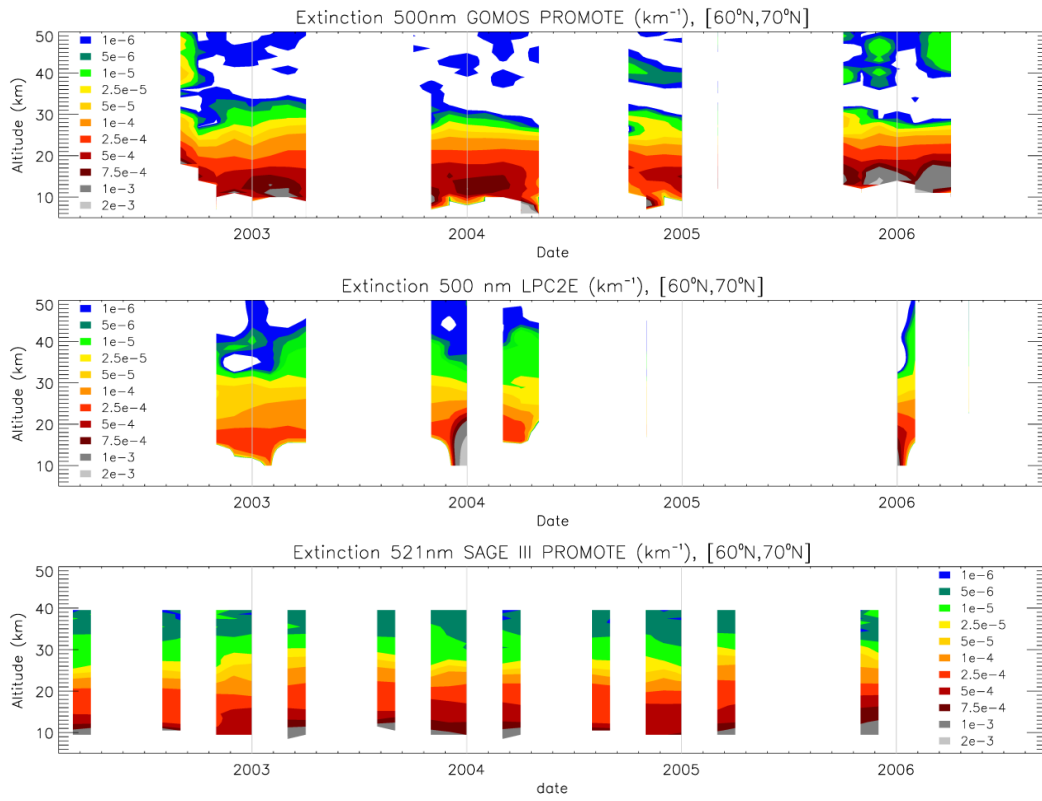


Figure 52. Idem Figure 51 pour des latitudes comprises entre 60°N et 70°N.

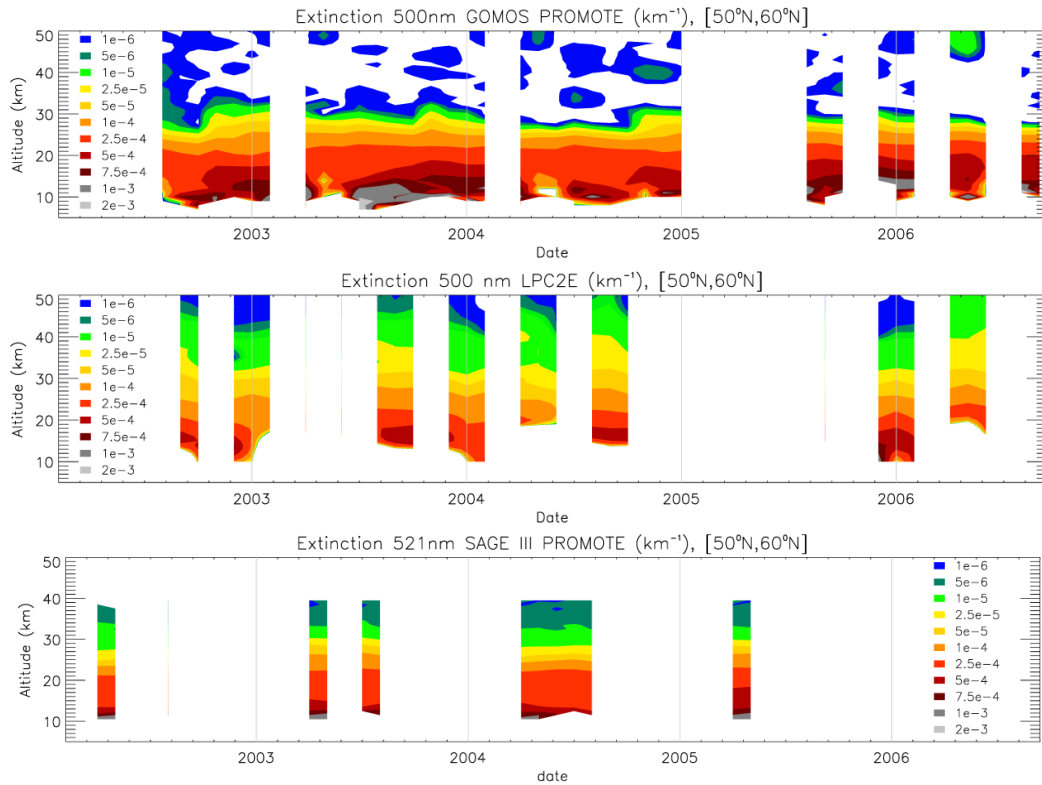


Figure 53. Idem figures précédentes pour des latitudes comprises entre 50°N et 60°N.

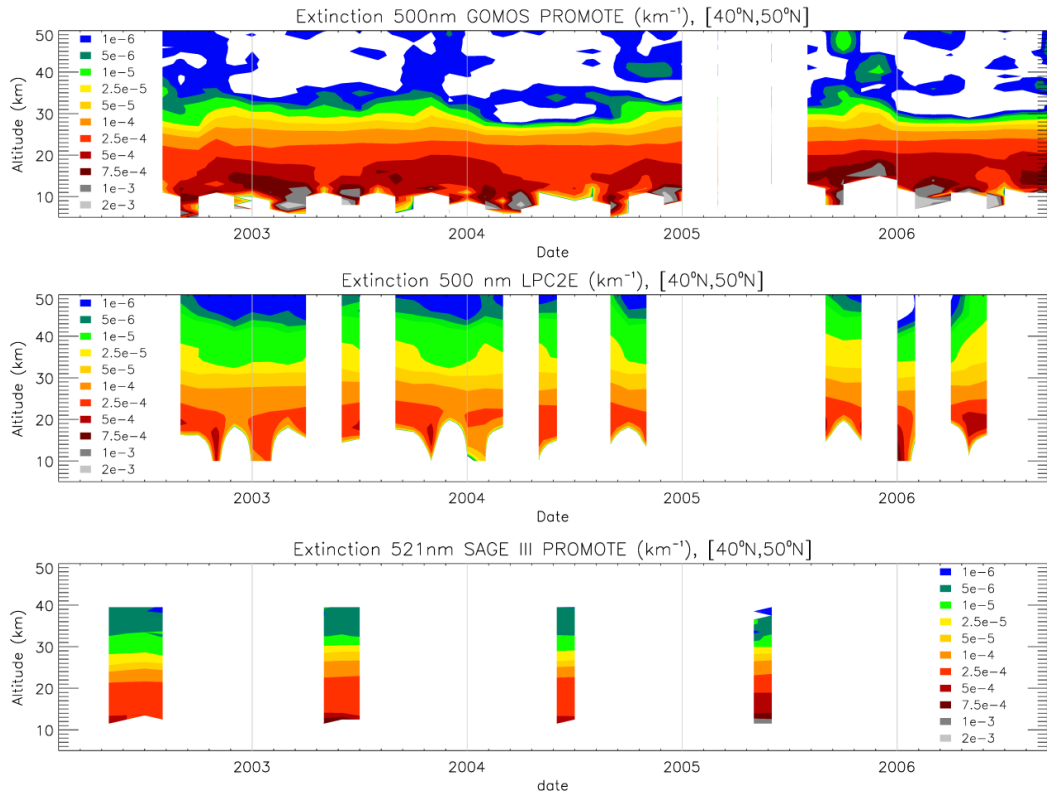


Figure 54. Idem figures précédentes pour des latitudes comprises entre 40°N et 50°N.

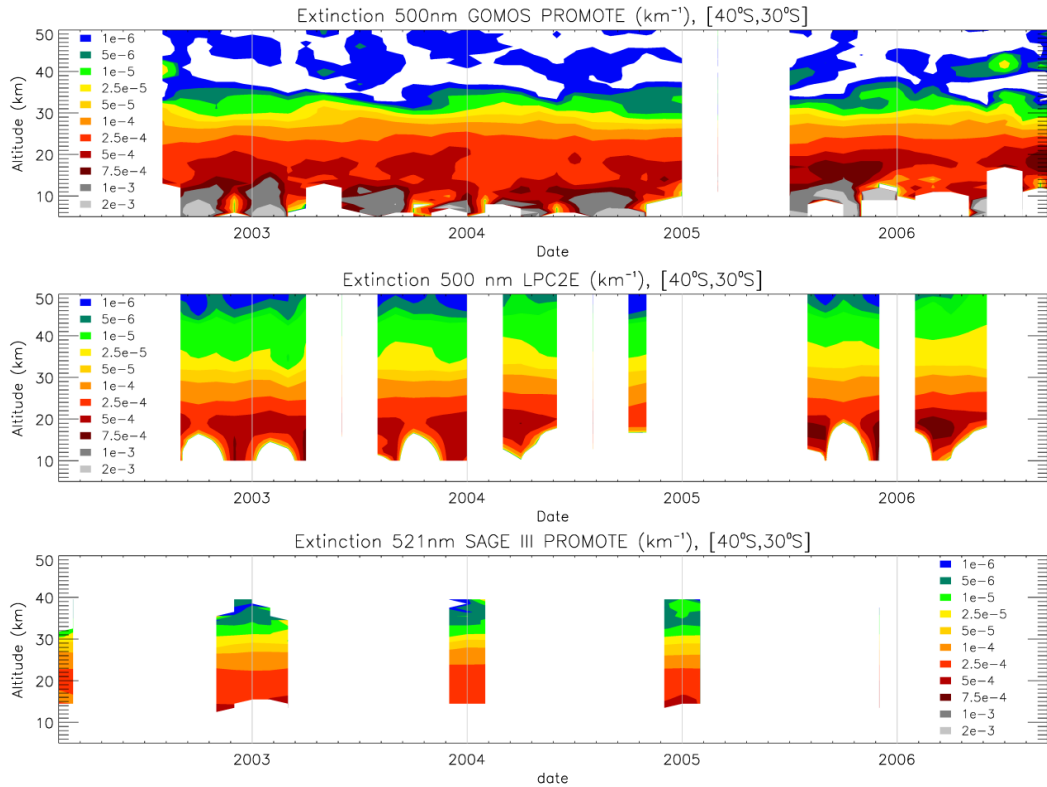


Figure 55. Idem figures précédentes pour des latitudes comprises entre 30°S et 40°S.

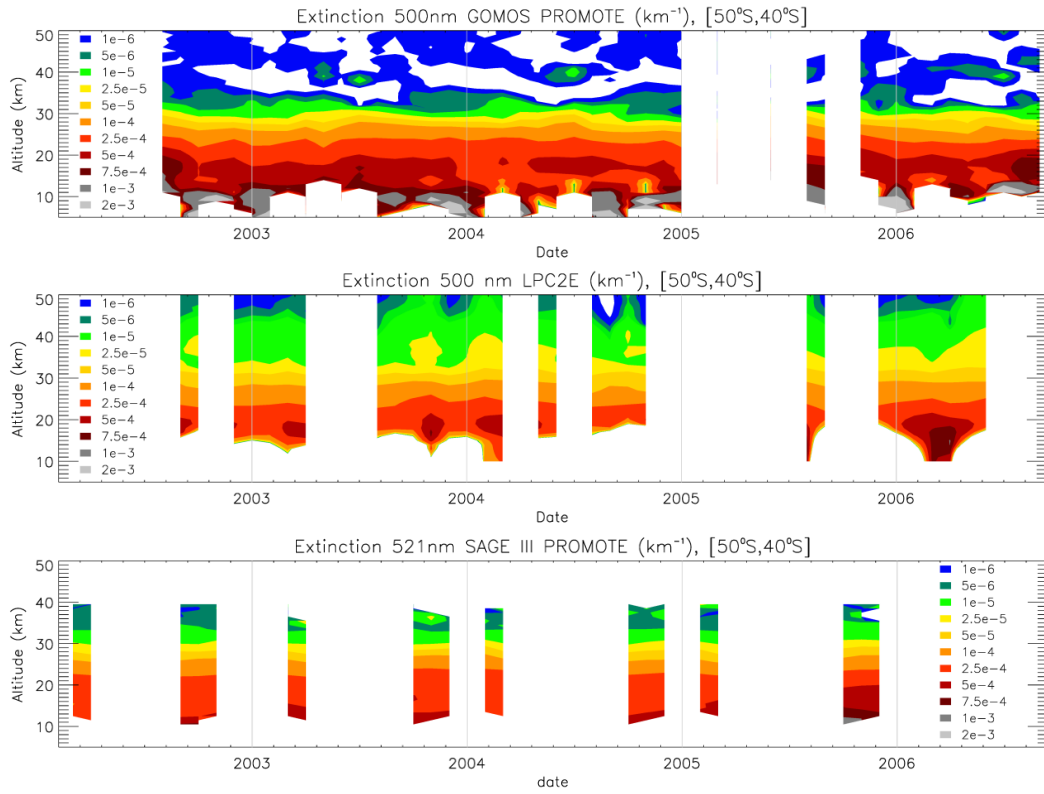


Figure 56. Idem figures précédentes pour des latitudes comprises entre 40°S et 50°S

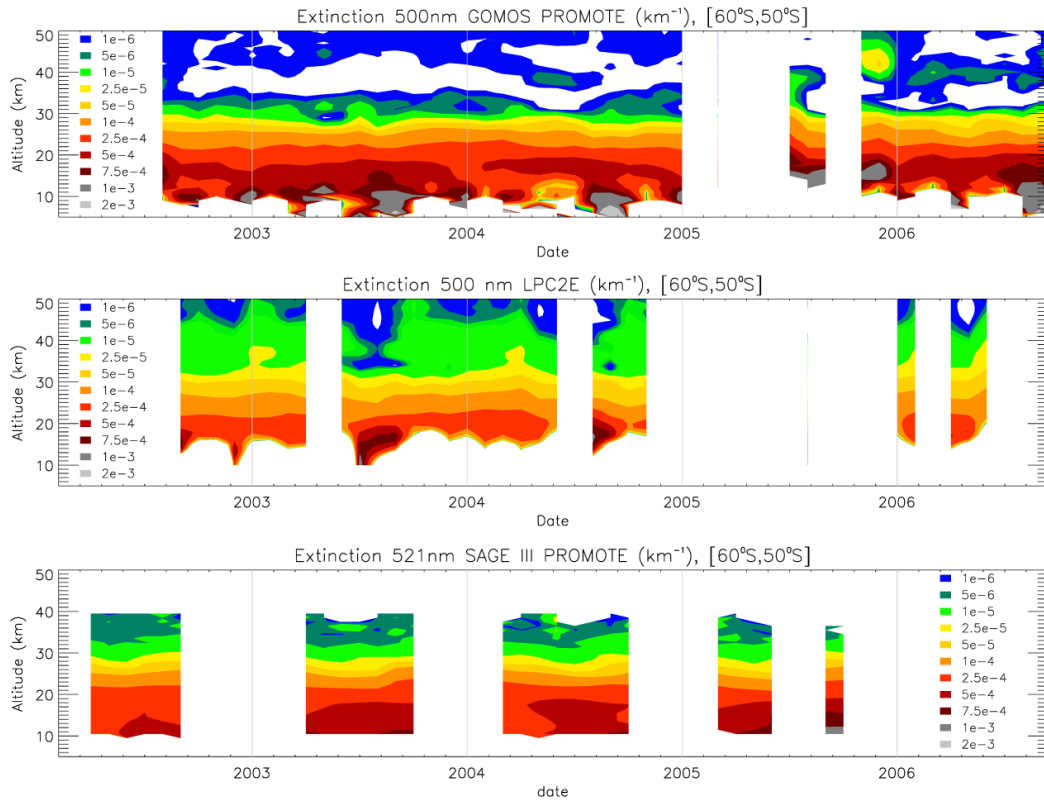


Figure 57. Idem figures précédentes pour des latitudes comprises entre 50°S et 60°S

D'après les Figures 51 à 57, il semble que les différences entre les produits GOMOS-LPC2E et GOMOS-PROMOTE soient plus prononcées que celles existant entre les produits GOMOS-LPC2E et les produits GOMOS officiels de niveau 2 (Figures 47 à 50). La raison principale est que dans le premier cas, le critère de sélection n'a pas été imposé aux données récupérées dans la base de données PROMOTE; l'utilisation de valeurs moyennes pour les produits LPC2E, et valeurs médianes dans le cas des données PROMOTE peut aussi conduire à des résultats dissemblables, du fait de la grande variabilité spatio-temporelle des mesures de GOMOS (qui peuvent être très nombreuses pour peu de jours d'un même mois, mais peu représentatives de la période).

Il existe globalement un bon accord entre les données d'extinction GOMOS-LPC2E (à 500 nm) et les données SAGE III (à 521 nm, pour lesquelles un polynôme de deuxième degré est utilisé dans l'ajustement des variations spectrales des coefficients d'extinction). Étant donné que l'échantillonnage de SAGE III est régulier, les moyennes mensuelles PROMOTE sont dans ce cas bien représentatives des périodes considérées. Les pourcentages des différences entre les deux jeux de données ont été calculés (équation 3.16) d'après les valeurs moyennes mensuelles de l'année 2004, en utilisant des bandes de 10° de latitude.

$$Dif(\%) = 2 \times \frac{Ext_{LPC2E} - Ext_{SAGE\ III}}{Ext_{LPC2E} + Ext_{SAGE\ III}} \times 100 \quad (3.16)$$

Les moyennes et l'écart type de ces différences relatives sont présentés dans la Figure 58. Dans la basse stratosphère on observe une très grande variabilité des valeurs de différences; celles-ci diminuent (inférieures à 25%) entre 20 et 25 km, où les valeurs d'extinction par SAGE III sont généralement plus élevées. Aux altitudes supérieures à 25 km et jusqu'à 40 km, ce sont les produits GOMOS qui dominent dans tous les cas, et les différences relatives sont de moins de 45%.

De la même façon, les différences entre les données officielles de GOMOS et de SAGE III (équation 3.17) sont présentées dans la Figure 59. Globalement, on constate un désaccord plus important dans la moyenne stratosphère au-dessus de 25 km d'altitude, mais des différences parfois plus faibles dans la basse stratosphère, où les valeurs d'extinction officielles de GOMOS sont supérieures dans tous les cas.

$$Dif(\%) = 2 \times \frac{Ext_{OFFICIEL} - Ext_{SAGE\ III}}{Ext_{OFFICIEL} + Ext_{SAGE\ III}} \times 100 \quad (3.17)$$

Enfin, les différences entre les données GOMOS-LPC2E et celles issues du traitement avec l'algorithme officiel (équation 3.15) sont présentées dans la Figure 60, aux mêmes bandes de latitudes que les figures précédentes. Le même critère de sélection sur l'écart type a été appliqué dans ce cas aux deux méthodes; les différences sont cependant assez importantes.

Une tendance générale apparaît clairement dans ces figures: prédominance des valeurs d'extinction officielles dans la basse stratosphère (en dessous d'une altitude qui varie entre 23 et 27 kilomètres), et prédominance des valeurs d'extinction par LPC2E dans la moyenne et haute stratosphère, notamment au-dessus de 35 kilomètres d'altitude, où les différences sont supérieures à 100%.

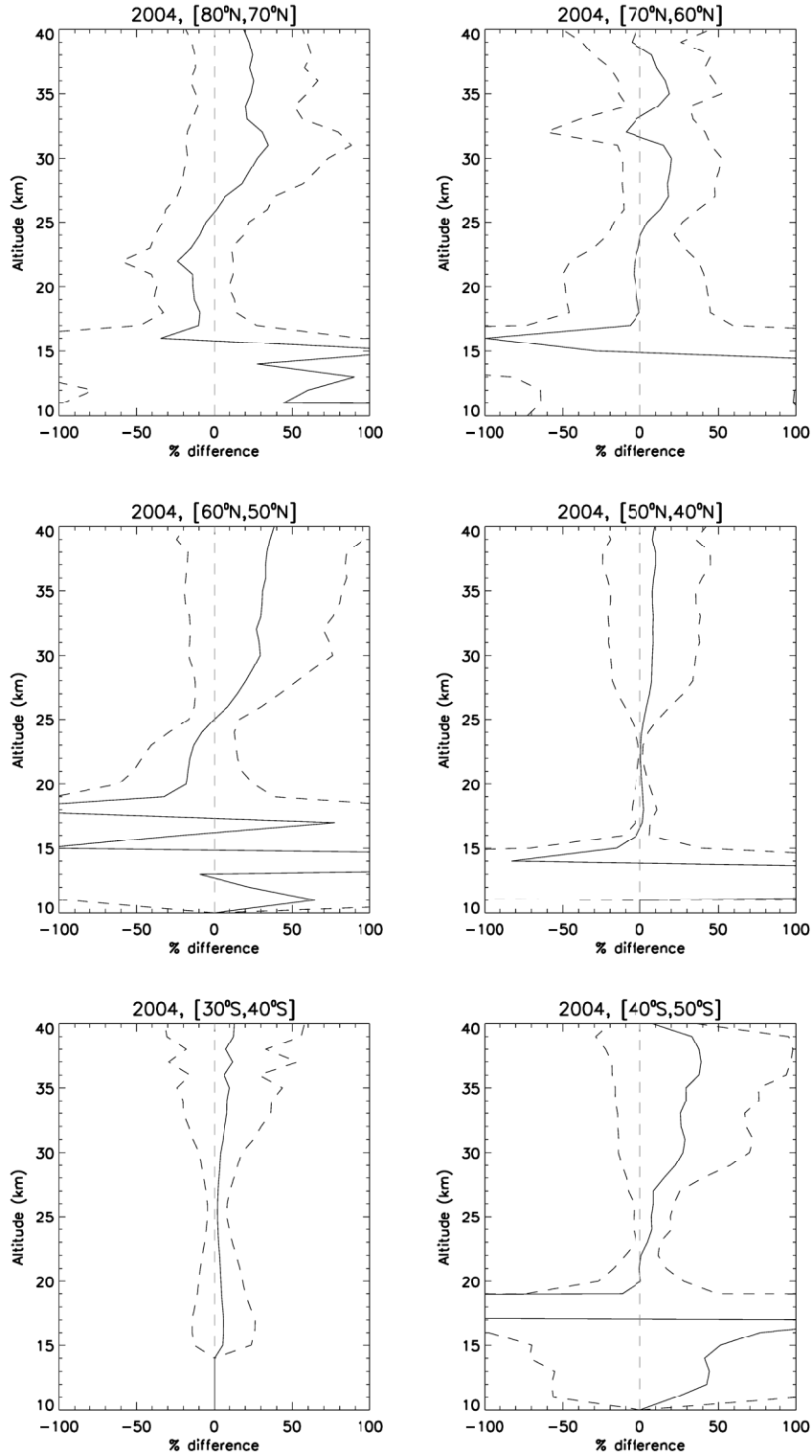


Figure 58. Moyenne et écart type du pourcentage de la différence relative (équation 3.16) entre les valeurs mensuelles d'extinction à 500 nm de GOMOS (version 5.0) par l'algorithme du LPC2E et d'extinction à 521 nm de SAGE III (version 3.0), pour les bandes de latitude 80°N-70°N, 70°N-60°N, 60°N-50°N, 50°N-40°N, 30°S-40°S et 40°S-50°S en 2004.

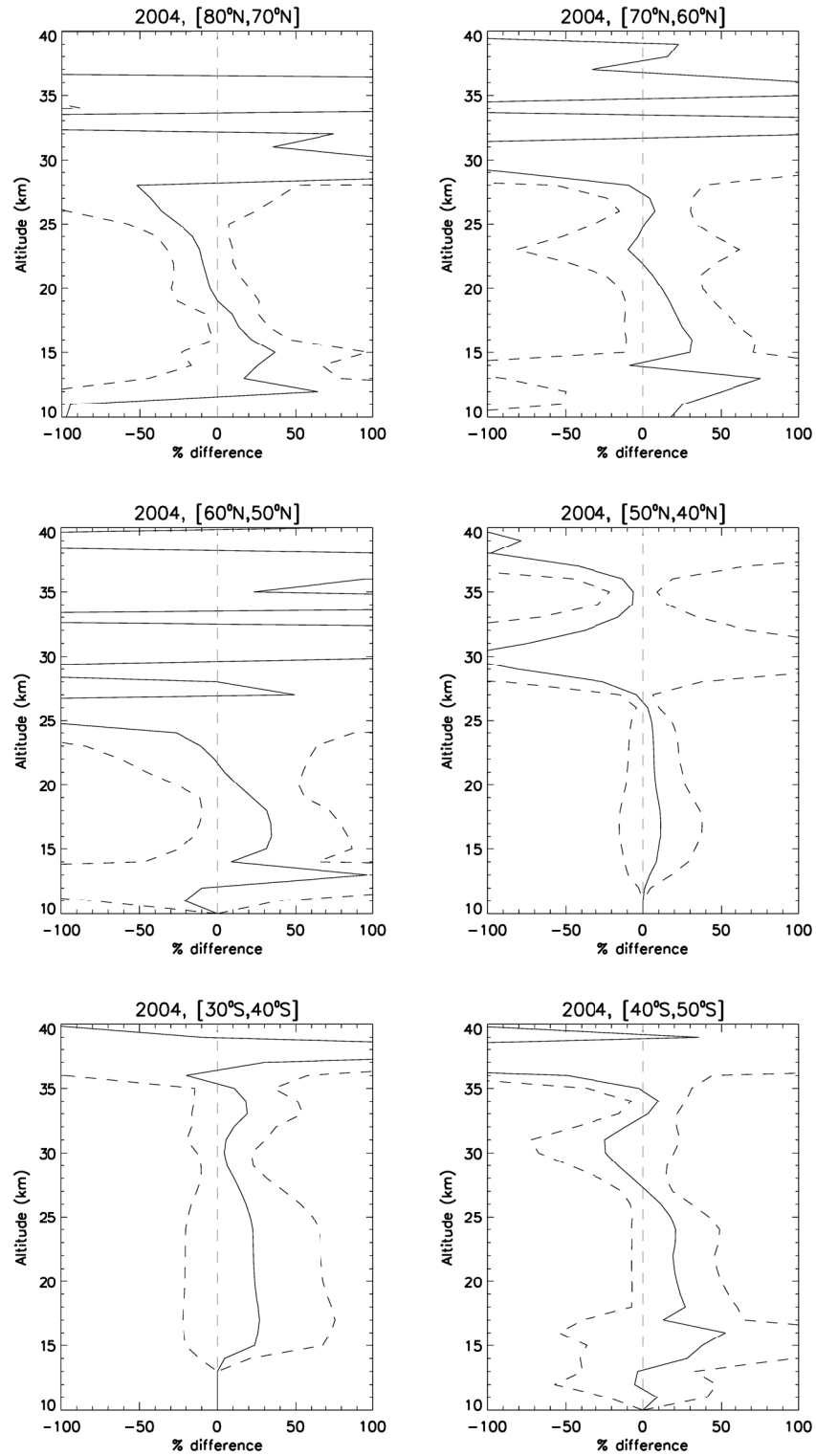


Figure 59. Moyenne et écart type du pourcentage de la différence relative (équation 3.16) entre les valeurs mensuelles d'extinction à 500 nm de GOMOS par l'algorithme officiel (version 5.0) et d'extinction à 521 nm de SAGE III (version 3.0), pour les bandes de latitude 80°N-70°N, 70°N-60°N, 60°N-50°N, 50°N-40°N, 30°S-40°S et 40°S-50°S en 2004.

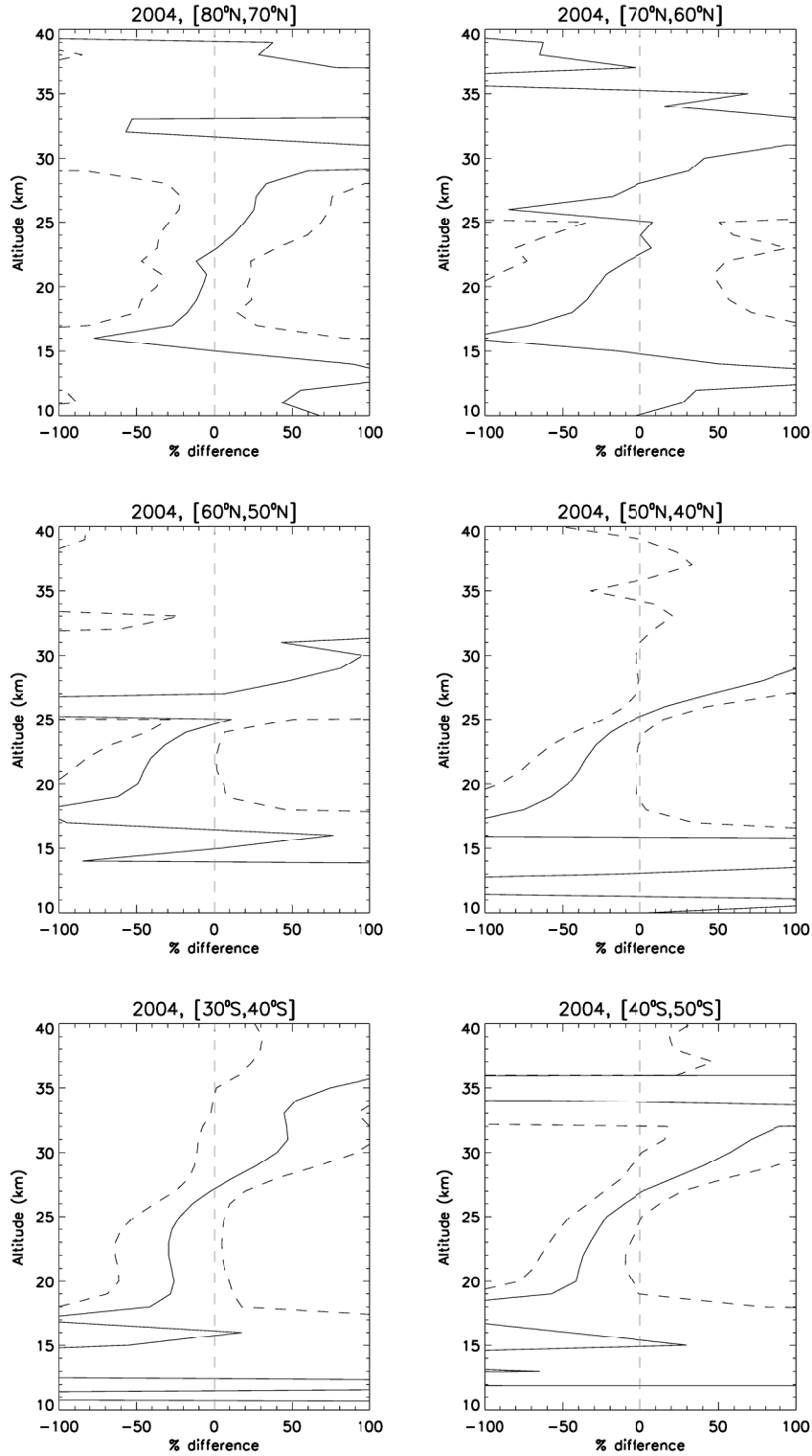


Figure 60. Moyenne et écart type du pourcentage de la différence relative (équation 3.16) entre les valeurs mensuelles d'extinction à 500 nm de GOMOS par l'algorithme du LPC2E et d'extinction par l'algorithme officiel (version 5.0 dans les deux cas), pour les bandes de latitude 80°N-70°N, 70°N-60°N, 60°N-50°N, 50°N-40°N, 30°S-40°S et 40°S-50°S en 2004.



En conclusion d'après la méthode décrite dans ce chapitre, il ressort des résultats présentés que les différences relatives calculées entre les données issues du traitement avec l'algorithme du LPC2E et les données officielles GOMOS de niveau 2 (dans leurs versions 5.0 et/ou 6.0) sont plus importantes qu'initialement prévu. Celles-ci résultent principalement de l'utilisation du domaine UV-visible et de l'ajustement du spectre résiduel par un polynôme de degré 2 dans le premier cas, alors que le domaine spectral est restreint au visible, et un polynôme de quatrième degré est utilisé dans le traitement avec l'algorithme du LPC2E. Par ailleurs, la variabilité de la précision des mesures rend indispensable l'application d'un critère de sélection. Celui mis au point dans ce travail est très sélectif, car la qualité des produits a été privilégiée en dépit d'une couverture complète des données.

L'algorithme officiel est l'outil adéquat pour l'étude des aérosols de la basse stratosphère. Les données y sont parfois en meilleur accord avec les résultats de SAGE III que les données issues du traitement par l'algorithme du LPC2E, et ont été utilisées dans l'élaboration de diverses climatologies d'aérosols, la dernière étant celle présentée par Vanhellemont et al. (2010), pour la période allant de 2002 à 2008, où les auteurs identifient et étudient différents types d'aérosols.

Cependant, dans la moyenne et haute stratosphère, la limite de détection de l'algorithme du LPC2E semble être au-delà des altitudes typiquement observées avec l'algorithme officiel. Une estimation globale des différences moyennes relatives entre les résultats issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E et les données officielles de SAGE III (dans leur version 3.0) montre que les valeurs d'extinction sont généralement en bon accord entre 30 km et 40 km d'altitude. Ces tests ont motivé l'élaboration de la climatologie présentée dans le suivant chapitre, pour la période de disponibilité des données de niveau 1b, en retraitant celles-ci avec l'algorithme du LPC2E.



---

# Chapitre 4

## Climatologie 2002-2006 et analyse

Les données de niveau 1b à partir desquelles est fait le traitement avec l'algorithme du LPC2E sont disponibles depuis août 2002 jusqu'à juillet 2006. Ce chapitre présente pour cette période l'étude de l'extinction des aérosols à 500 nm dans la stratosphère, et de leur dépendance spectrale dans le domaine visible, dont l'interprétation permet d'estimer des aspects concernant la taille et la nature des particules. Dans la première partie, la couverture temporelle et géographique des données traitées par la méthode d'analyse mise au point est décrite. La présence de particules dans l'ensemble de la stratosphère est discutée ensuite, ainsi que la variabilité de leur contenu et leur répartition verticale et géographique. Certaines tendances saisonnières ont été décelées (section 4.5), et quelques événements particuliers sont décrits (section 4.6).

La période dont il est question présente un intérêt spécial car d'une part, le contenu en aérosols volcaniques y est relativement faible, ce qui permet d'étudier d'autres types de particules. D'autre part, les hivers polaires ont été particuliers, et de ce fait sont amplement décrits dans la bibliographie, ce qui permet de replacer les observations dans un contexte relativement bien connu. Enfin, plusieurs campagnes de mesures par instruments sous ballons stratosphériques ont eu lieu, avec la participation du LPC2E et du LOA par le lancement d'instruments destinés à la mesure des aérosols: MicroRADIBAL en mars 2004, SALOMON en janvier 2006, et STAC dans plusieurs vols, dont ceux ayant eu lieu hors de la période étudiée, entre 2008 et 2010 sont brièvement décrits (section 4.4.3).

## 4.1 Couverture temporelle et géographique

Comme il a été dit précédemment, l'instrument GOMOS effectue un échantillonnage rapide de l'atmosphère, et présente comme avantages (entre autres) une bonne couverture géographique et temporelle. Cependant, la couverture géographique est irrégulière, car les étoiles sont distribuées aléatoirement dans le ciel; de plus, l'utilisation des critères de sélection diminue considérablement le nombre de profils, et conduit à une inhomogénéité de la distribution des données pour les différentes périodes de la climatologie. Ceci doit être pris en compte au moment de comparer les moyennes saisonnières ou annuelles.

Une analyse des données GOMOS de niveau 2 obtenues par traitement avec la version 5.0 de l'algorithme officiel a été effectuée, et les données de niveau 1b ont été traitées avec l'algorithme du LPC2E.

Les Tableaux 4-1 à 4-5 résument le nombre d'occultations disponibles chaque mois pour les années 2002 à 2006. La deuxième colonne contient le nombre total pour chaque mois; les colonnes suivantes indiquent le pourcentage de profils -obtenus à partir du traitement des données de niveau 1b par l'algorithme du LPC2E- accomplissant les différents critères de sélection, dans l'ordre dans lequel ceux-ci sont appliqués: d'abord, le critère sur l'altitude minimale de l'ozone (section 3.2.2) et le critère sur l'écart type (section 3.2.1), avec le pourcentage total qui résulte de la sélection d'après cette première étape; puis le critère sur l'incertitude de l'ozone (section 3.2.3). Ensuite est donné le nombre total de profils qui constituent la climatologie, et le pourcentage que ce chiffre représente par rapport au nombre total de profils disponibles. La dernière colonne résume le pourcentage de profils (produits de niveau 2, traités avec la version 5.0 de l'algorithme officiel) ayant accompli le critère de sélection sur l'écart type.

Mois 2002	Nombre de profils GOMOS	Profils gardés par le 1 <sup>er</sup> critère de sélection			2 <sup>eme</sup> critère	Nombre et % total de profils gardés		% total produits officiels
		25 km	$\sigma$	Total	O <sub>3</sub>			
Août	1831	47%	83%	39%	49%	<b>352</b>	19%	34%
Septembre	7103	47%	79%	37%	50%	<b>1328</b>	19%	28%
Octobre	4630	40%	72%	29%	61%	<b>830</b>	18%	22%
Novembre	9000	45%	82%	37%	67%	<b>2221</b>	25%	27%
Décembre	9768	53%	83%	44%	75%	<b>3288</b>	34%	33%
<b>TOTAL</b>	<b>32332</b>					<b>8019</b>		
<b>Moyenne</b>		<b>46%</b>	<b>80%</b>	<b>37%</b>	<b>60%</b>		<b>23%</b>	<b>29%</b>

Tableau 4-1. Nombre total de profils traités par mois à partir du 26 août, pourcentage de produits sélectionnés à chaque étape du traitement et nombre total de profils accomplissant les critères de sélection, et qui sont par conséquent inclus dans la climatologie pour l'année 2002.

Mois 2003	Nombre de profils GOMOS	Profils gardés par le 1 <sup>er</sup> critère de sélection			2 <sup>eme</sup> critère	Nombre et % total de profils gardés		% total produits officiels
		25 km	$\sigma$	Total	O <sub>3</sub>			
Janvier	12616	56%	80%	45%	71%	<b>4072</b>	32%	36%
Février	8467	55%	75%	41%	86%	<b>2957</b>	35%	33%
Mars	10097	52%	73%	38%	77%	<b>2962</b>	29%	32%
Avril	7786	53%	74%	39%	65%	<b>1987</b>	26%	29%
Mai	349	47%	69%	32%	56%	<b>63</b>	18%	29%
Juin	6632	42%	68%	28%	40%	<b>756</b>	11%	26%
Juillet	5471	48%	73%	35%	73%	<b>1417</b>	26%	23%
Août	12681	51%	86%	43%	70%	<b>3874</b>	30%	29%
Septembre	9921	47%	75%	35%	59%	<b>2083</b>	21%	27%
Octobre	10967	43%	68%	29%	64%	<b>2019</b>	18%	21%
Novembre	11924	45%	78%	35%	66%	<b>2752</b>	23%	28%
Décembre	13910	55%	82%	45%	72%	<b>4544</b>	33%	34%
<b>TOTAL</b>	<b>110821</b>					<b>29486</b>		
<b>Moyenne</b>		<b>49%</b>	<b>75%</b>	<b>37%</b>	<b>67%</b>		<b>25%</b>	<b>29%</b>

Tableau 4-2. Idem Tableau 4-1 pour l'année 2003, à partir du 1<sup>er</sup> janvier.

Mois 2004	Nombre de profils GOMOS	Profils gardés par le 1 <sup>er</sup> critère de sélection			2 <sup>eme</sup> critère	Nombre et % total de profils gardés		% total produits officiels
		25 km	$\sigma$	Total	O <sub>3</sub>			
Janvier	14778	54%	82%	45%	69%	<b>4575</b>	31%	37%
Février	12228	53%	51%	27%	27%	<b>886</b>	7%	32%
Mars	13770	49%	57%	28%	44%	<b>1681</b>	12%	28%
Avril	12685	50%	41%	20%	20%	<b>505</b>	4%	29%
Mai	12961	45%	69%	31%	54%	<b>2225</b>	17%	24%
Juin	12416	42%	58%	24%	43%	<b>1283</b>	10%	22%
Juillet	13556	28%	22%	6%	12%	<b>101</b>	1%	20%
Août	12647	36%	66%	24%	47%	<b>1394</b>	11%	29%
Septembre	11777	43%	53%	23%	16%	<b>435</b>	4%	25%
Octobre	10826	41%	65%	26%	54%	<b>1547</b>	14%	21%
Novembre	11760	45%	74%	33%	62%	<b>2484</b>	21%	27%
Décembre	12237	51%	58%	30%	3%	<b>110</b>	1%	34%
<b>TOTAL</b>	<b>151641</b>					<b>17226</b>		
<b>Moyenne</b>		<b>45%</b>	<b>58%</b>	<b>26%</b>	<b>38%</b>		<b>11%</b>	<b>27%</b>

Tableau 4-3. Idem tableaux précédents pour l'année 2004, à partir du 1<sup>er</sup> janvier.

#### 4.1. Couverture temporelle et géographique

Mois 2005	Nombre de profils GOMOS	Profils gardés par le 1 <sup>er</sup> critère de sélection			2 <sup>eme</sup> critère	Nombre et % total de profils gardés		% total produits officiels
		25 km	$\sigma$	Total	O <sub>3</sub>			
Janvier	10997	54%	65%	35%	27%	<b>1045</b>	10%	34%
Juillet	2150	36%	77%	27%	67%	<b>395</b>	18%	16%
Août	3989	45%	64%	29%	65%	<b>746</b>	19%	23%
Septembre	6430	45%	63%	28%	77%	<b>1418</b>	22%	19%
Octobre	6590	38%	76%	29%	67%	<b>1269</b>	19%	19%
Novembre	6929	35%	59%	20%	68%	<b>955</b>	14%	19%
Décembre	7638	45%	72%	31%	62%	<b>1462</b>	19%	26%
<b>TOTAL</b>	<b>44723</b>					<b>7290</b>		
<b>Moyenne</b>		<b>48%</b>	<b>68%</b>	<b>32%</b>	<b>62%</b>		<b>20%</b>	<b>22%</b>

Tableau 4-4. Idem tableaux précédents pour l'année 2005, du 1<sup>er</sup> au 25 janvier et du 18 juillet au 31 décembre.

Mois 2006	Nombre de profils GOMOS	Profils gardés par le 1 <sup>er</sup> critère de sélection			2 <sup>eme</sup> critère	Nombre et % total de profils gardés		% total produits officiels
		25 km	$\sigma$	Total	O <sub>3</sub>			
Janvier	9899	57%	76%	44%	66%	<b>2839</b>	29%	35%
Février	8925	61%	71%	43%	76%	<b>2918</b>	33%	33%
Mars	7416	47%	56%	26%	44%	<b>865</b>	12%	21%
Avril	8108	46%	55%	26%	38%	<b>790</b>	10%	20%
Mai	8892	45%	66%	30%	40%	<b>1082</b>	12%	23%
Juin	7589	43%	55%	27%	30%	<b>605</b>	8%	17%
Juillet	972	55%	55%	19%	52%	<b>98</b>	10%	12%
<b>TOTAL</b>	<b>51801</b>					<b>9197</b>		
<b>Moyenne</b>		<b>50%</b>	<b>62%</b>	<b>31%</b>	<b>49%</b>		<b>16%</b>	<b>23%</b>

Tableau 4-5. Idem tableaux précédents, du 1<sup>er</sup> janvier au 4 juillet 2006.

On constate que le pourcentage des profils (produits officiels) conservés après application du critère de sélection sur l'écart type est, dans la plupart des cas, similaire au pourcentage total des profils conservés issus du traitement avec l'algorithme du LPC2E, après application des divers critères de sélection. Ceci est justifié par les oscillations ou structures artificielles qui sont présentes dans les profils de l'extinction des produits officiels (Figures 44 à 46). Cependant, le pourcentage de profils conservés est plus constant dans le cas des produits officiels, et ne se voit pas affecté par les périodes problématiques de 2004 recueillies dans le Tableau 3-3.

Dans le cas du traitement avec l'algorithme du LPC2E, le pourcentage de profils satisfaisant les différents critères informe sur les problèmes rencontrés à chaque étape du traitement :

- Le critère sur l'altitude minimale d'ozone informe sur la géométrie de l'occultation et sur les caractéristiques des étoiles observées. Le nombre de profils rejetés est stable pour toutes les années traitées, du fait de la périodicité annuelle de l'échantillonnage (section 2.3). En moyenne annuelle, entre 45% et 50% de profils accomplissent ce critère de sélection.
- Le critère sur l'écart type de l'extinction est un indicateur de la qualité de l'ajustement mathématique des spectres lors des différentes étapes de l'inversion, mais donne également une estimation du bruit initial des mesures (section 3.2.1). Le pourcentage de profils qui satisfont ce critère diminue en général avec le temps (excepté en 2004 où le nombre est très variable), de 80% pour les premiers mois de fonctionnement en 2002 à 62% en 2006. Ceci reflète probablement la dégradation progressive de l'instrument, qui fournit des spectres de plus en plus bruités.
- Le critère sur l'incertitude de l'ozone concerne uniquement les profils verticaux de cette espèce. Le pourcentage est peu variable pour les années 2002, 2003, 2005 (60%, 67% et 62% respectivement), et diminue à partir de mars 2006. La qualité des profils a été améliorée en 2003 par rapport aux premiers mois de fonctionnement de l'instrument. En 2004 le pourcentage de profils accomplissant ce critère est inférieur à 30% aux périodes déjà mentionnées, pendant lesquelles la qualité des produits semble compromise de façon importante (section 3.2.3). Janvier 2005 présente aussi un faible pourcentage, juste avant la panne de plusieurs mois qui est à l'origine de l'absence de données entre février et juillet.

La Figure 61 donne un résumé des informations contenues dans les tableaux 4-1 à 4-5. Le nombre de produits disponibles avant le traitement est tracé en bleu, et celui demeurant après sélection par le critère sur l'altitude minimale de l'ozone, l'écart type de l'extinction et l'incertitude de l'ozone apparaissent respectivement en rouge, jaune et vert.

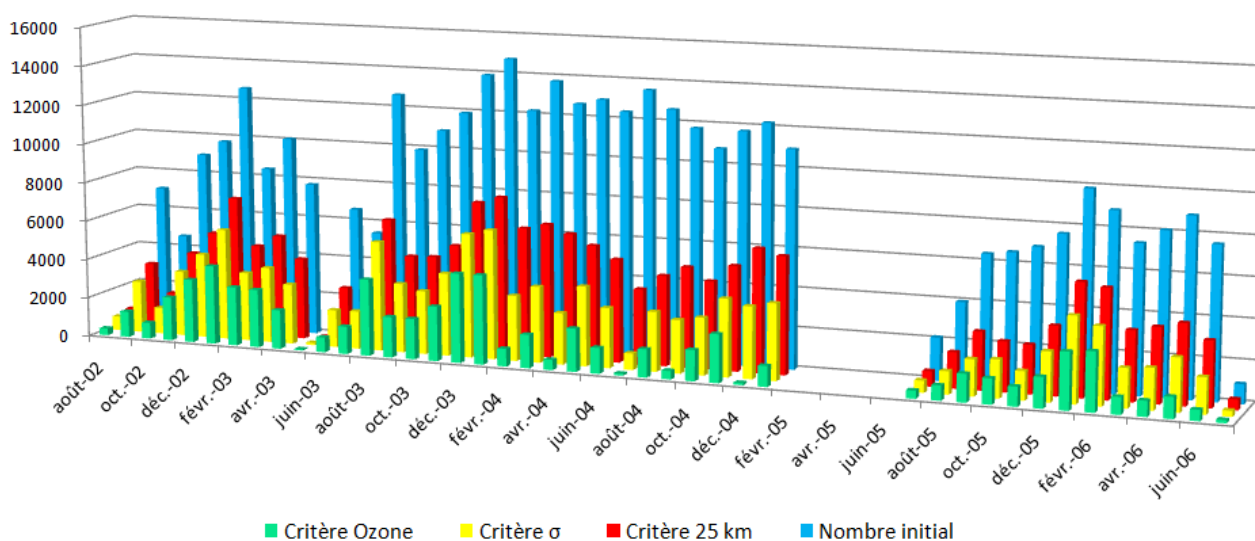


Figure 61. Nombre de profils à chaque étape du traitement.

La variabilité temporelle des données fournies par l'instrument est importante. En 2002 beaucoup d'opérations d'essai, de calibration et de validation ont été pratiquées lors des premiers mois de fonctionnement. Les années 2003 et 2004 sont complètes; globalement, l'année 2004 est plus régulière quant au nombre de données de niveau 1b, mais la qualité des profils rend leur nombre variable, pour une quantité totale moins importante qu'en 2003. À noter le faible apport de données en mai 2003, et l'absence de celles-ci entre février et juillet 2005 pour cause de pannes instrumentales.

La variabilité de la distribution géographique des mesures est montrée dans les Figures 62 et 63, dans lesquelles est présenté le nombre de profils inclus dans la climatologie en fonction de la latitude et de la période. Les blancs désignent l'absence de données, soit en été polaire, soit à cause de pannes instrumentales, soit par élimination des profils par les divers critères de sélection. Les régions de bonne couverture géographique disposent de plus de 5 profils (en bleu) par jour dans chaque bande de 20° de latitude, pouvant aller jusqu'à plus de 40 (en rouge). Les irrégularités plus prononcées ont lieu aux latitudes polaires dans l'hémisphère sud.

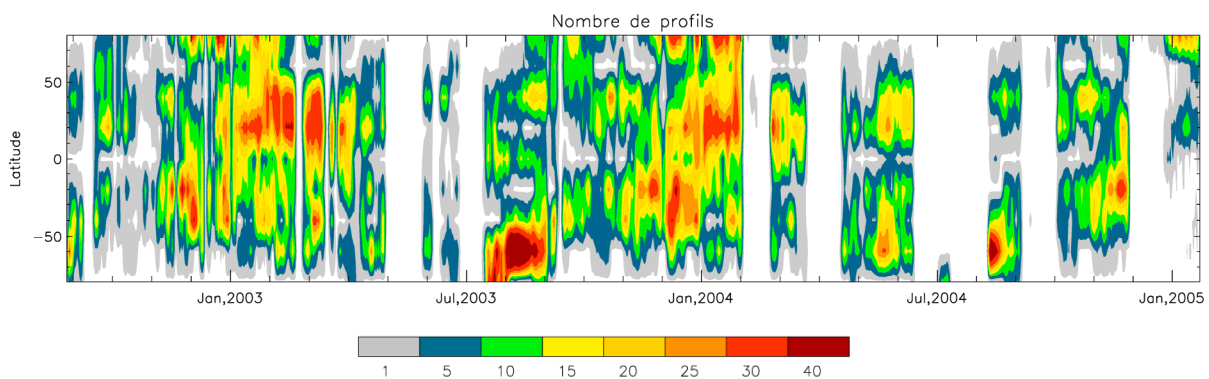


Figure 62. Nombre de profils inclus dans la climatologie en fonction de la latitude et de jour, d'août 2002 à janvier 2005.

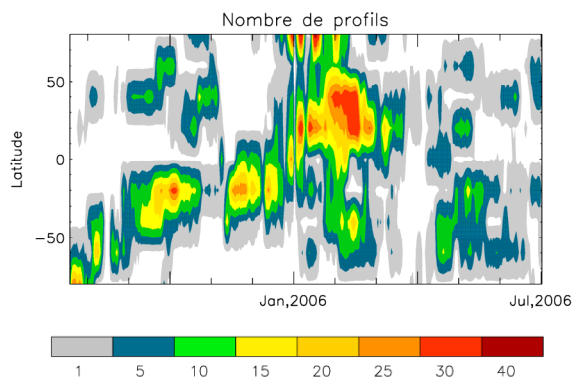


Figure 63. Nombre de profils inclus dans la climatologie en fonction de la latitude et du jour, de juillet 2005 à juillet 2006.



## 4.2 Profils d'extinction

L'allure d'un profil vertical individuel de l'extinction à plusieurs longueurs d'onde permet d'identifier les différents types d'aérosols, notamment la présence de la couche de Junge et de nuages stratosphériques polaires.

### 4.2.1 Couche de Junge

La période étudiée étant caractérisée par une faible activité volcanique (excepté les années 2005 et 2006), le contenu global en aérosols dans la couche de Junge est généralement assez faible. Le profil d'extinction est caractérisé par un maximum dont l'altitude varie entre 15 km et 25 km (Figure 64), et de plus fortes valeurs vers les plus courtes longueurs d'onde. Les résultats montrent que la couche de Junge n'est pas distribuée uniformément autour du globe.

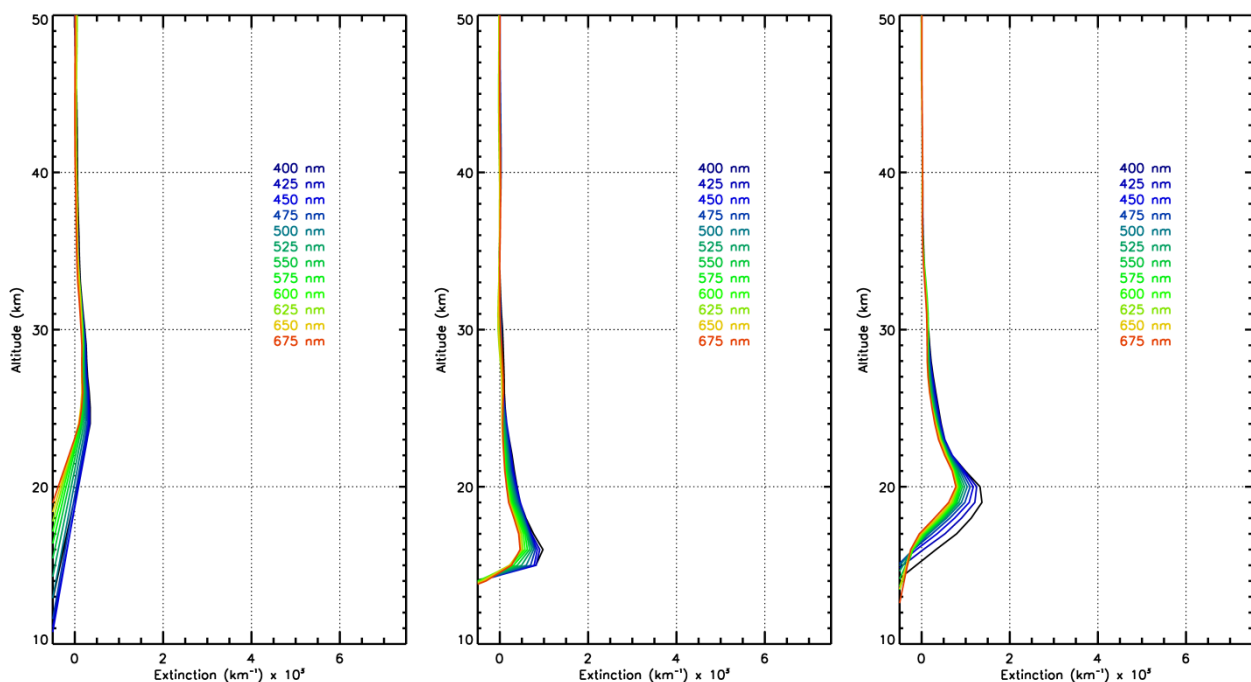


Figure 64. Exemple de profils individuels à différentes dates montrant la variabilité de la couche de Junge. À gauche, 26 mars 2003, à 1°S, 88°W, magnitude de l'étoile 1,91, faible contenu en aérosols. Au milieu, profil du 2 octobre 2005, 59° N, 156°E, magnitude 1,17, où la couche de Junge se situe à des altitudes bien inférieures à 20 km. À droite, l'altitude du maximum varie pour des valeurs d'extinction légèrement supérieures, le 28 mars 2003, 23°N, 80°W, 0,77 en magnitude. Valeurs d'extinction à multiplier par  $10^{-3}$ .

Les profils d'extinction aux latitudes équatoriales peuvent atteindre des valeurs maximales supérieures à  $4 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$  aux plus courtes longueurs d'onde autour de 20 km d'altitude (Figure 65), ce qui reflète l'existence d'un réservoir tropical d'aérosols sulfatés.

À ces latitudes il peut arriver que la présence de nuages cirrus dans la ligne de visée étoile-satellite induise une perte de signal (Wang et al., 1996, Keckhut et al., 2005), jusqu'à l'interruption de l'occultation lorsque les épaisseurs optiques sont élevées, ne permettant pas

le suivi de la source lumineuse aux altitudes tangentes inférieures. Ces nuages sont composés de cristaux de glace, qui se forment dans la haute troposphère aux températures inférieures au point de congélation de l'eau pure ( $\sim 235$  K); leur comportement spectral est neutre, comme le montre la Figure 66.

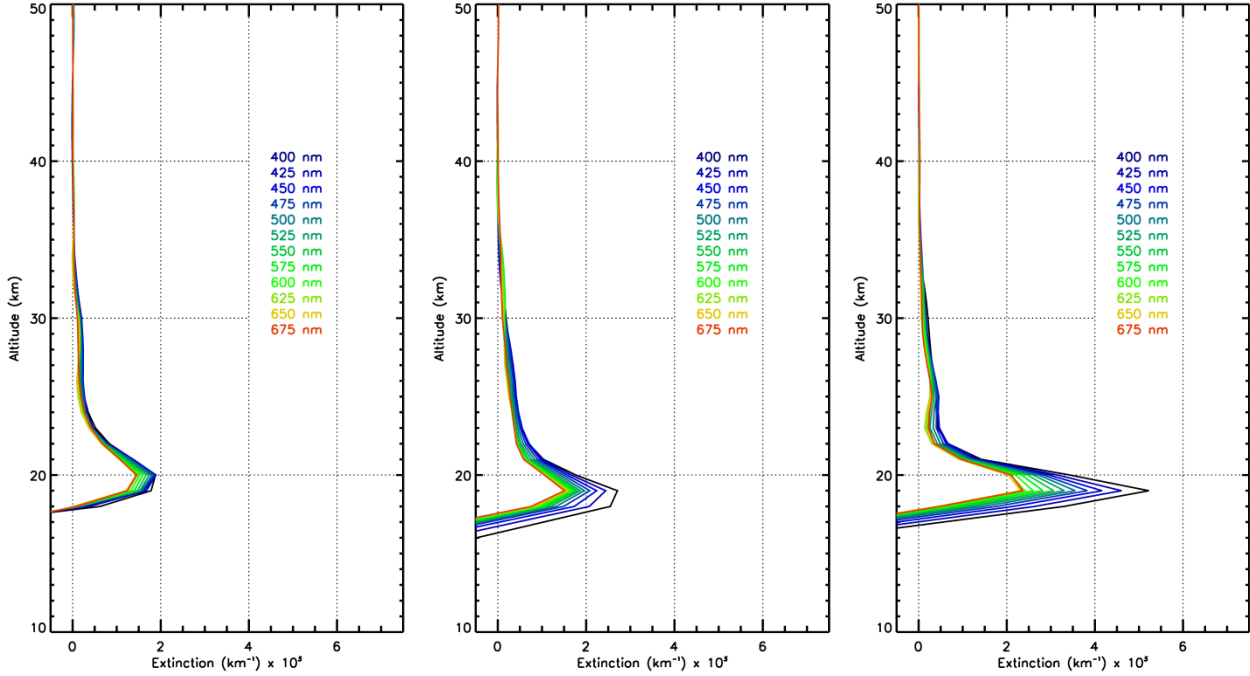


Figure 65. Exemples de profils d'extinction montrant de fortes valeurs dans la basse stratosphère, pour l'occultation d'étoiles de magnitude 1,86 (gauche) et 1,67 (milieu et droite) le 2 décembre 2002 à 8°N, 77°W (gauche), le 23 décembre 2002 à 6°N, 96°E (milieu) et le 6 décembre 2002 à 0° de latitude, 178°E (droite). Valeurs d'extinction à multiplier par  $10^{-3}$ .

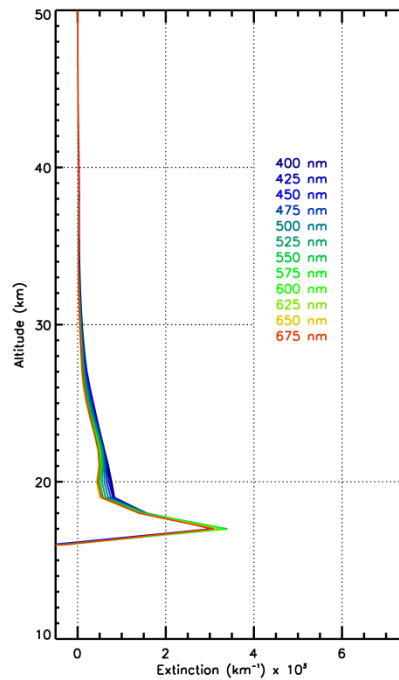


Figure 66. Profil d'extinction du 23 décembre 2002, montrant le comportement spectral typique d'un nuage cirrus. Magnitude de l'étoile 0,01, 26°S, 117°W. Valeurs d'extinction à multiplier par  $10^{-3}$ .

## 4.2.2 Nuages stratosphériques polaires

Les nuages stratosphériques polaires sont facilement identifiables; en Antarctique ils sont présents de mai à octobre, période pendant laquelle les valeurs d'extinction deviennent jusqu'à dix fois supérieures par rapport à la situation d'aérosols de fond (Figure 67).

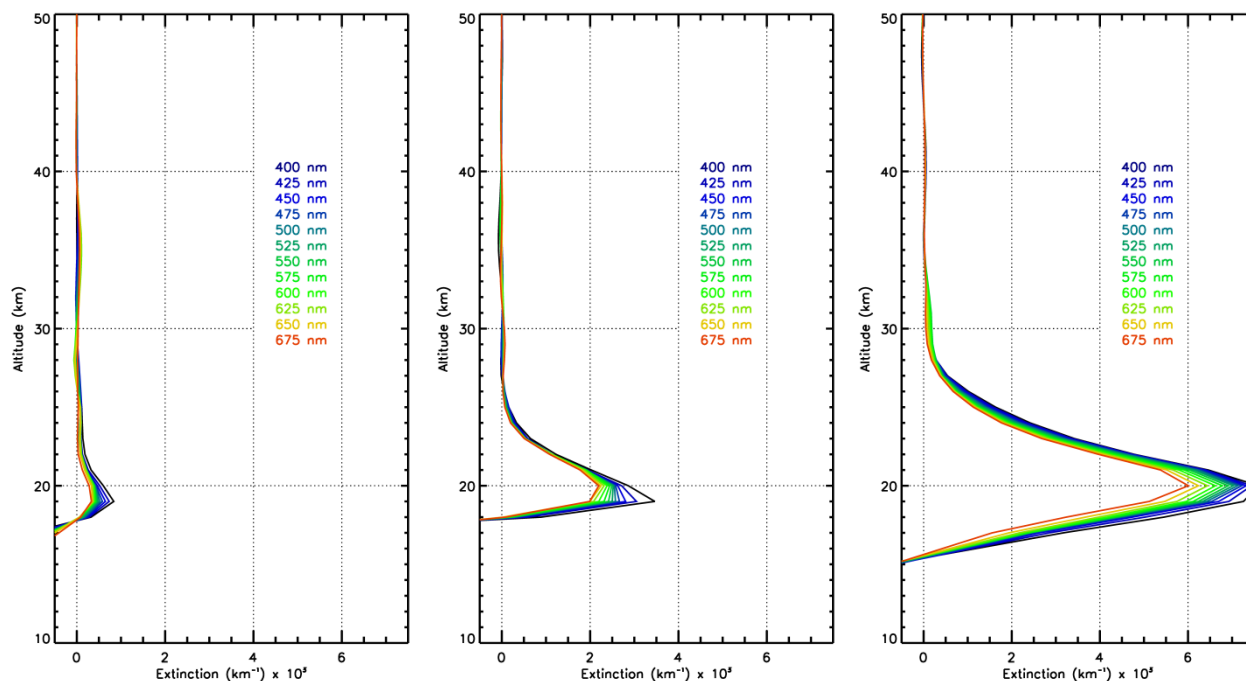


Figure 67. Exemples du contenu en aérosols le 17 août 2004, à 68°S, 175°W, étoile de magnitude 0,87 (gauche), et pour deux orbites successives le 20 août de la même année, à 67°S, 29°W, magnitude 0,87 (milieu), et 64°S, 48°W, magnitude -1,44 (droite). Valeurs d'extinction à multiplier par  $10^{-3}$ .

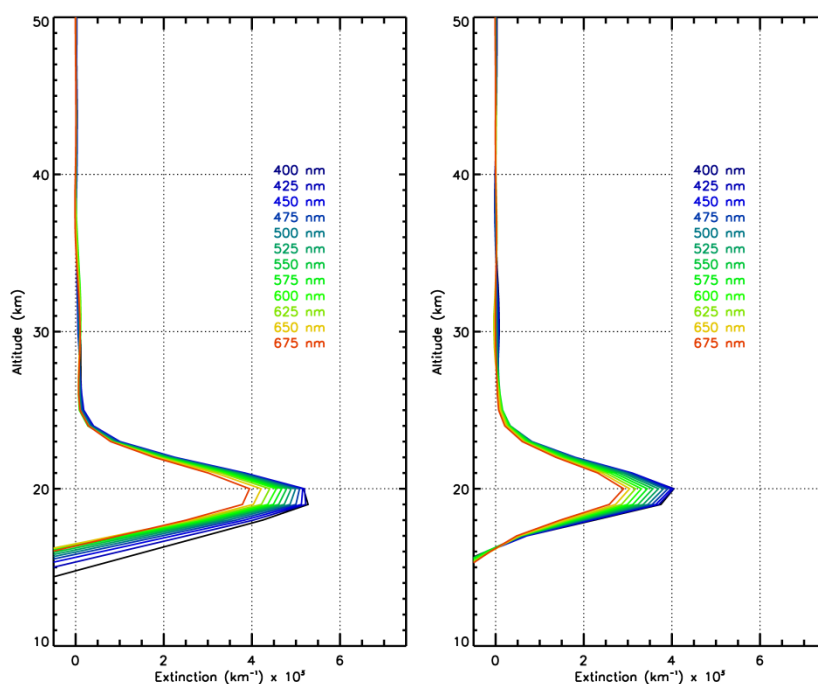


Figure 68. Profils typiques de PSCs arctiques, pour des orbites successives de l'étoile S0027 de magnitude 1,64, le 26 décembre 2002. À gauche: 83°N, 26°E; à droite: 83°N, 1°E. Valeurs d'extinction à multiplier par  $10^{-3}$ .

En Arctique, les nuages stratosphériques polaires peuvent être détectés entre le mois de décembre et le mois de mars; cependant, du fait des températures souvent moins extrêmes et d'un vortex moins stable, les valeurs d'extinction n'atteignent pas des valeurs aussi élevées qu'en Antarctique (Figure 68).

La présence de nuages stratosphériques polaires dans la ligne de visée étoile-satellite implique, comme dans le cas des nuages cirrus, une perte de signal; les occultations s'achèvent souvent à une altitude de 15 km à 18 km dans la nuit antarctique par exemple. La réduction du signal implique aussi que les profils soient interrompus à des altitudes plus élevées à cause du critère imposé dans l'inversion spectrale (selon lequel le rapport signal sur bruit doit être supérieur à 1) et à cause du critère imposé dans l'inversion verticale (d'après lequel celle-ci est interrompue lorsque le rapport de la valeur sur l'incertitude est inférieur à 1).

### 4.2.3 Moyennes journalières

La méthode d'analyse conduit à des profils individuels montrant la dépendance spectrale de l'extinction. Les Figures 69 et 70 montrent quelques exemples de ces profils (sans prise en compte du critère d'arrêt de l'occultation pour visualisation de l'extinction jusqu'à 10 km), pour une série enregistrée la même journée dans les bandes de latitudes comprises entre 50°N-30°N et 30°N-10°N. À gauche dans les figures apparaît la dépendance spectrale de l'extinction; au milieu, l'incertitude à une longueur d'onde  $\lambda=500$  nm, et à droite, celle à  $\lambda=400$  nm. La valeur des incertitudes est l'estimation qui résulte de la valeur de l'écart type lors de l'ajustement par la fonction REGRESS (régression linéaire par moindres carrés) entre le résidu spectral et le polynôme de quatrième degré dans l'étape d'inversion spectrale (section 3.1.2).

Les valeurs d'extinction des profils individuels sont ensuite interpolées dans une grille constante espacée d'un kilomètre, par bandes de 10° (90°N-80°N à 80°S-90°S), ou 20° de latitude (90°N-70°N à 70°S-90°S). Le nombre de profils individuels disponibles est généralement supérieur à 5, pouvant aller jusqu'à plus de 40 pour chaque bande de 20° de latitude, comme le montrent les Figures 62 et 63 (page 108). L'incertitude de l'extinction est alors en partie compensée dans le profil moyen; la Figure 71 en présente un exemple pour 10 profils moyennés, enregistrés le 20 mars 2003 entre 30°N et 50°N.

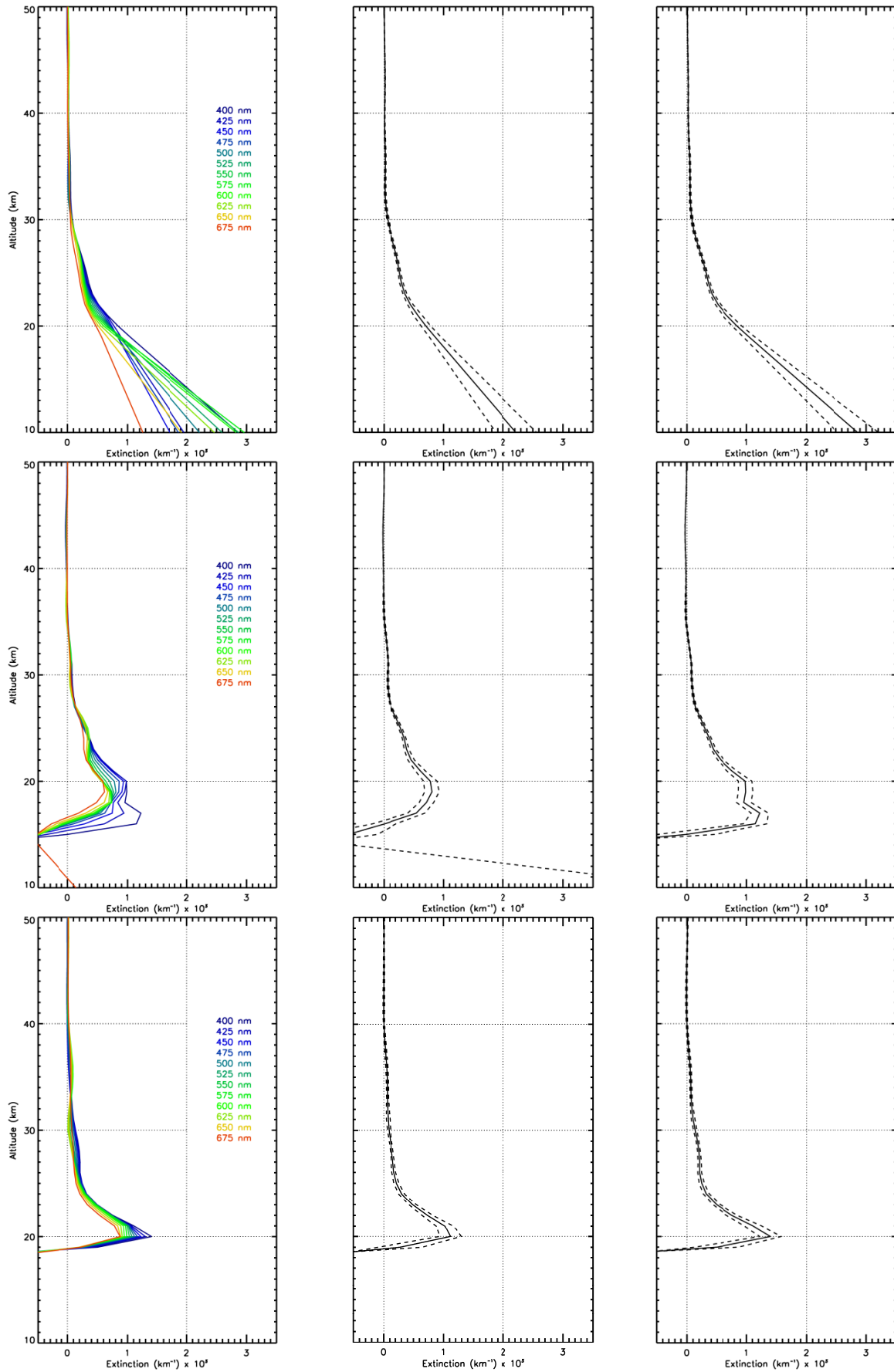


Figure 69. Exemples de la dépendance spectrale (gauche), l'extinction à 500 nm et à 400 nm (milieu et droite respectivement, incertitude en pointillés) pour une série de profils du 20 mars 2003, à 34°N, 38°W, magnitude 2,20 (haut), 34°N, 63°E, magnitude 2,20 (milieu) et 26°N, 65°E, 1,62 (bas).

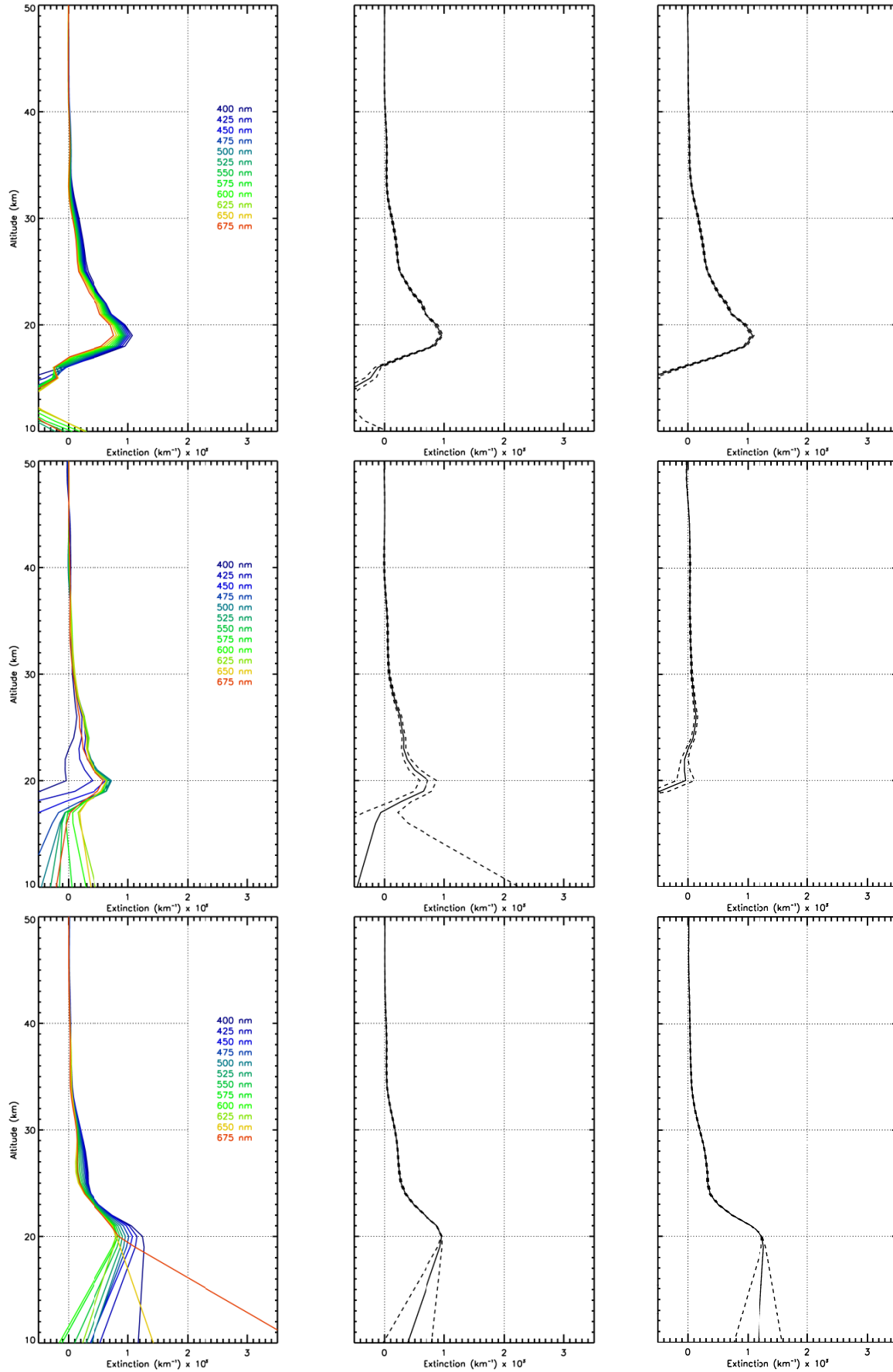


Figure 70. Idem figure précédente pour 21°N, 117°E, magnitude 0,77 (haut), 26°N, 116°E, magnitude 1,62 (milieu) et 13°N, 48°W, magnitude -0,01.

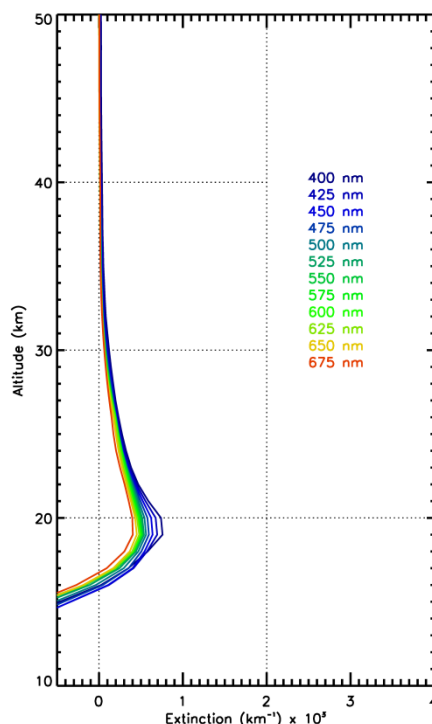


Figure 71. Profil moyen du 20 mars 2003 pour la bande de latitudes 50°N-30°N, obtenu à partir de 10 profils individuels sélectionnés, dont les 2 premiers sont montrés comme exemple dans la Figure 69.

À partir de ces moyennes journalières, deux paramètres sont présentés dans la climatologie. D'une part, les valeurs d'extinction à 500 nm permettent d'estimer la concentration des particules et d'étudier leur répartition et évolution temporelle; la valeur à 500 nm est choisie car c'est la longueur d'onde de référence utilisée dans les produits officiels de GOMOS. D'autre part, la dépendance spectrale, décrite par l'indice de couleur qui sera introduit dans la section 4.4, informe sur la dépendance spectrale du coefficient d'extinction, et donc sur la nature des particules.

### 4.3 Répartition spatiale des aérosols

Les Figures 73, 75 et 77 montrent les contours des valeurs moyennes journalières du coefficient d'extinction à 500 nm, et donnent un aperçu de la distribution verticale des aérosols pour les périodes allant d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006. Une moyenne glissante est appliquée sur 3 jours.

Une estimation des incertitudes en pourcentage a été calculée en moyennant les incertitudes individuelles de chaque profil, et en les divisant par les moyennes de l'extinction à 500 nm :

$$\%_{\text{Incertitude}} = \left| \frac{\text{Incertitude}}{\text{Ext}_{500\text{nm}}} \right| \times 100 \quad (4.1)$$

Le résultat (équation 4.1) est présenté dans les Figures 72, 73 et 75.

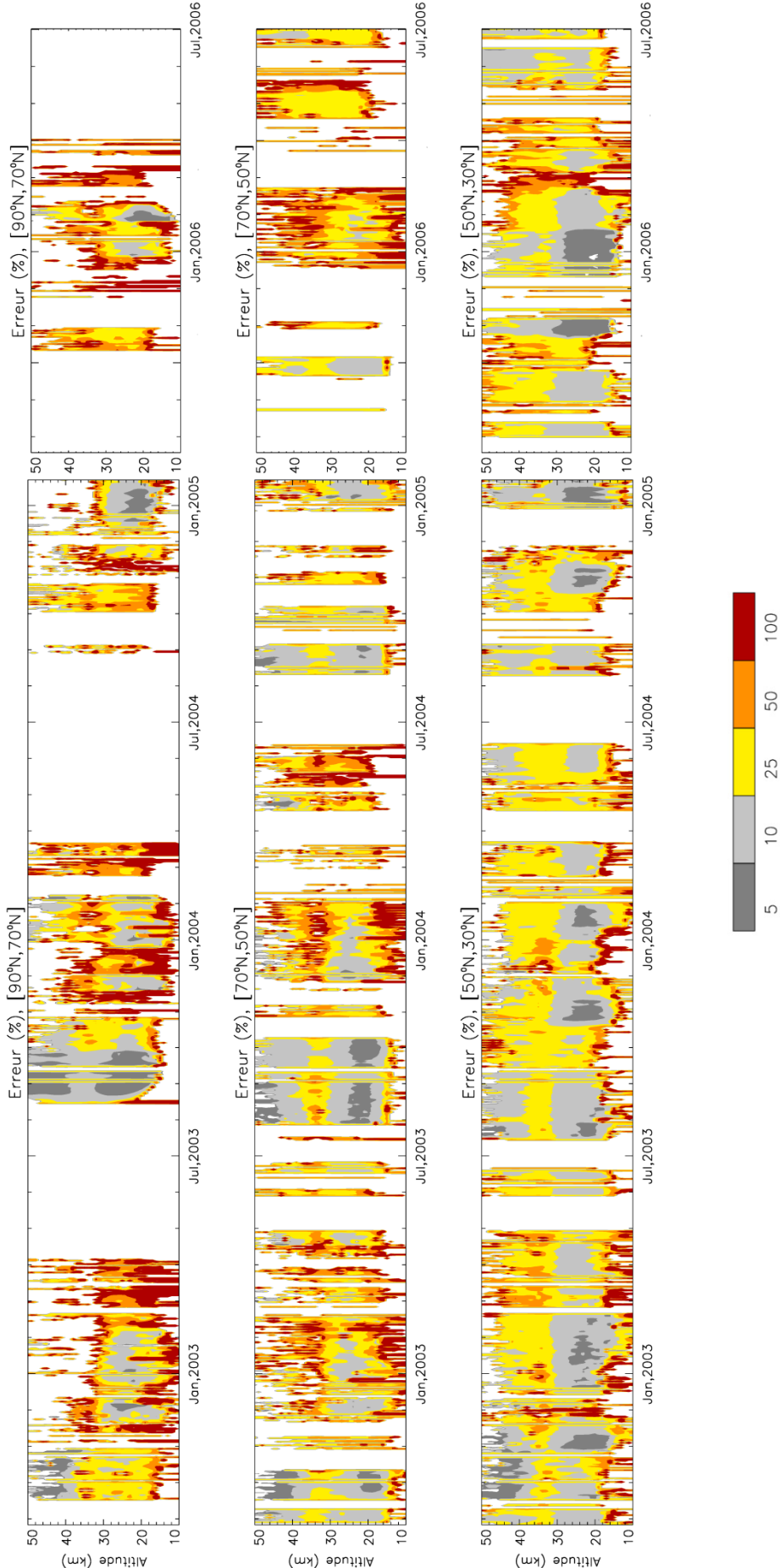


Figure 72. Valeurs moyennes de l’erreur relative de l’extinction à 500 nm, dans l’hémisphère nord, d’août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.



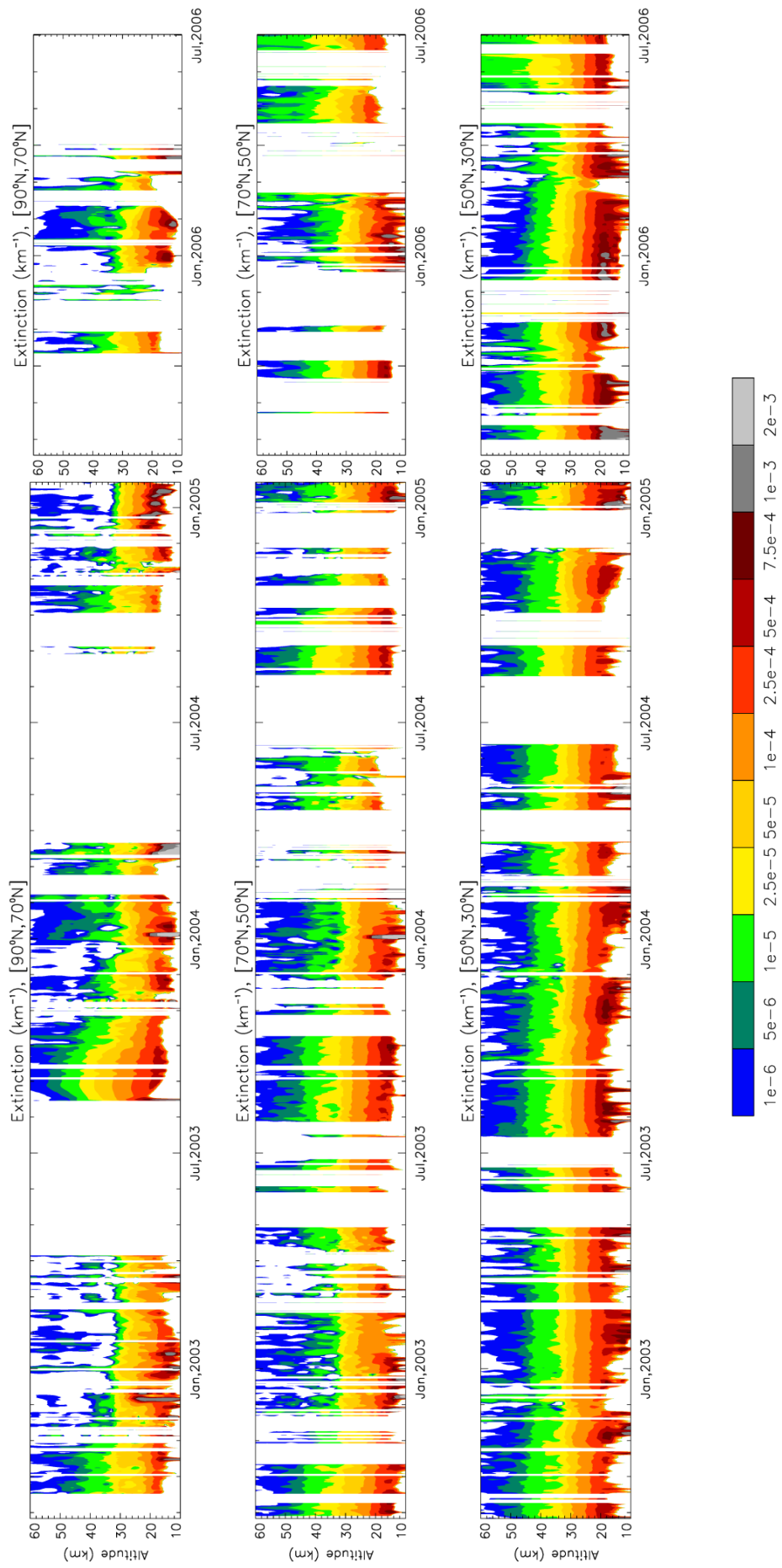


Figure 73. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm, dans l'hémisphère nord, d'août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

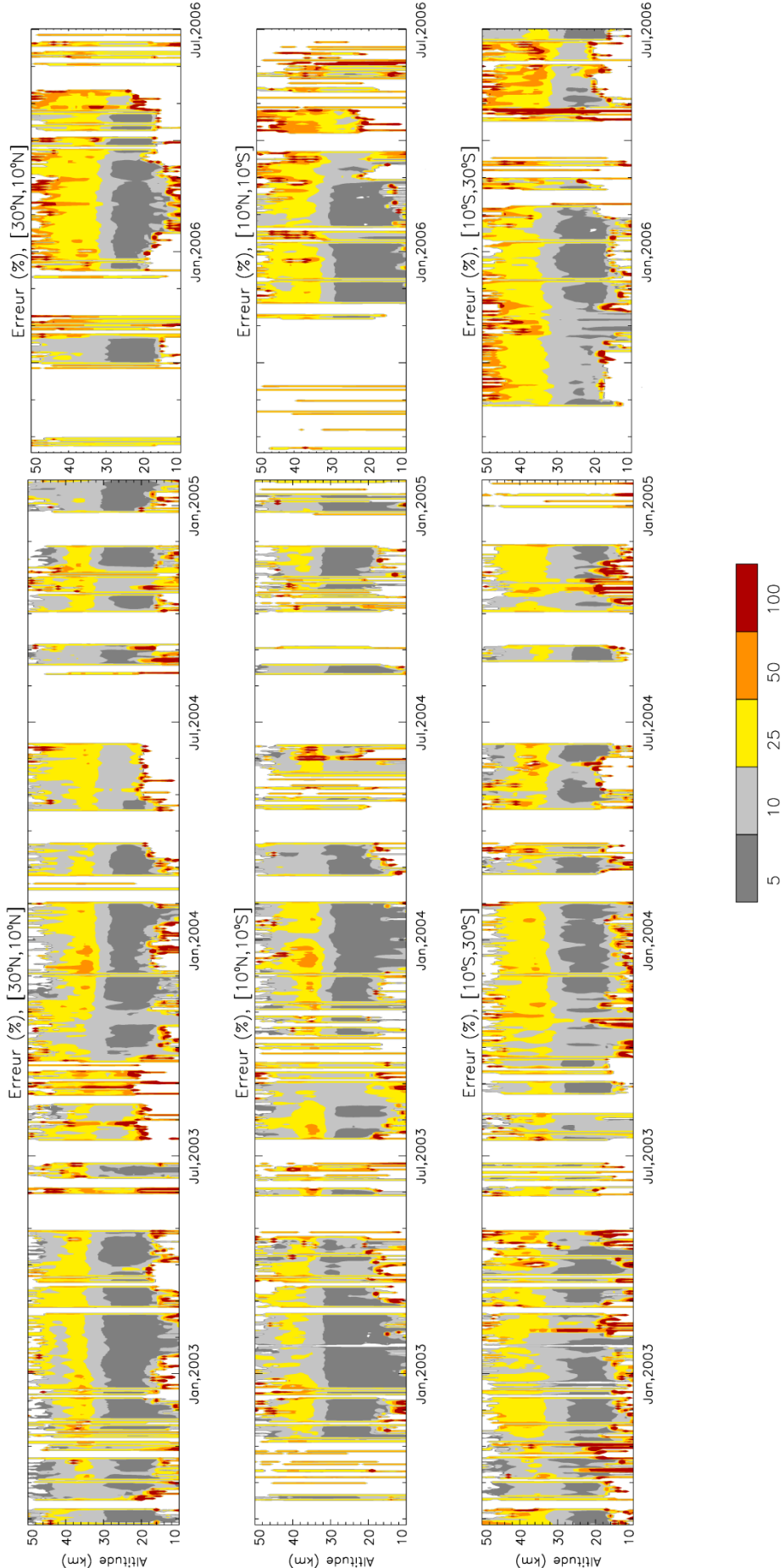


Figure 74. Valeurs moyennes de l’erreur relative de l’extinction à 500 nm, entre 30°N et 30°S, d’août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

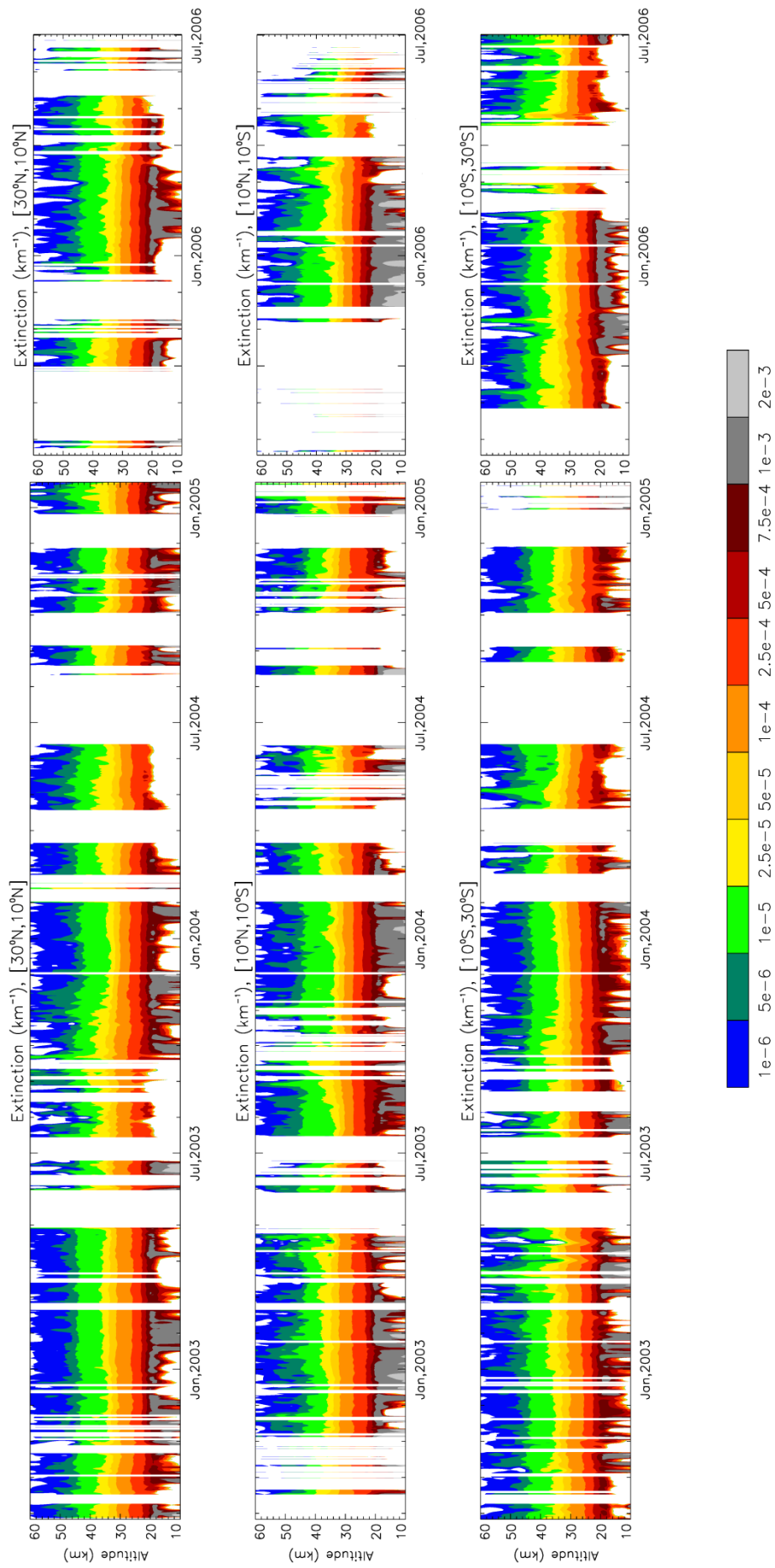


Figure 75. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm entre 30°N et 30°S, d'août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

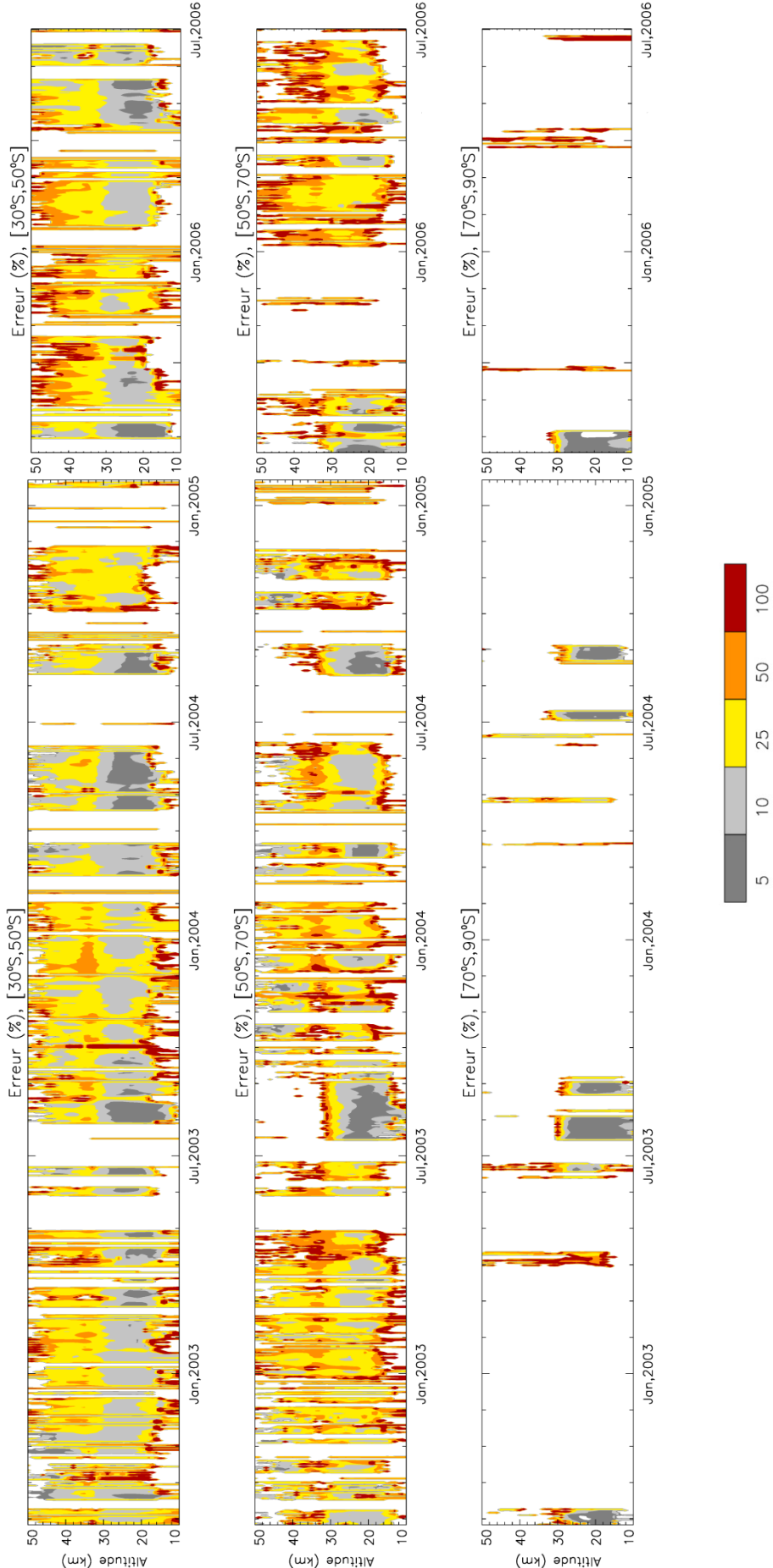


Figure 76. Valeurs moyennes de l’erreur relative de l’extinction à 500 nm, dans l’hémisphère sud, d’août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

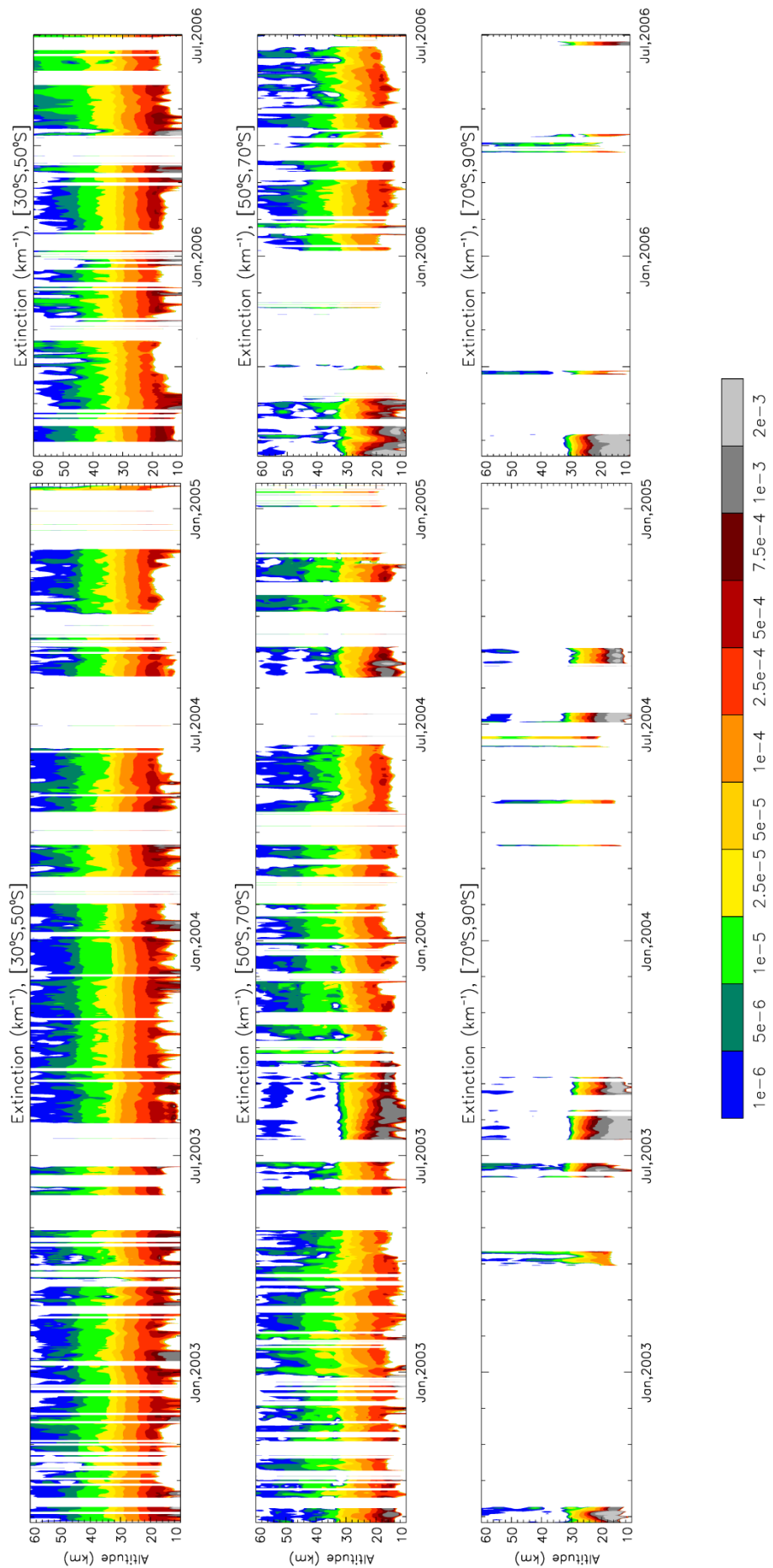


Figure 77. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm dans l'hémisphère sud d'août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

Les coefficients d'extinction varient entre une valeur qui est à la limite de détection, aux environs de  $1 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$ , et des valeurs supérieures à  $2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$  qui peuvent être atteintes dans la basse stratosphère, uniquement aux latitudes tropicales ou polaires, en présence du réservoir tropical ou de nuages stratosphériques polaires. L'estimation de l'incertitude associée à l'ajustement du spectre résiduel fournit des valeurs inférieures à 5-10% lors de l'observation de PSCs antarctiques ou de fortes valeurs aux latitudes tropicales, mais atteint 100% d'erreur dans le cas de PSCs arctiques (voir par exemple les valeurs pendant l'hiver 2003-2004 dans la basse stratosphère, entre 70°N et 90°N, Figures 72 et 73).

Outre ces phénomènes, le maximum que l'on retrouve autour de 20 km correspond à la couche de Junge, dont le contenu varie considérablement selon les périodes et la latitude. Les coefficients d'extinction oscillent entre  $1 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  et  $1 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1}$  et les valeurs d'incertitude sont comprises entre moins de 5-10% aux tropiques à 25-50% aux latitudes polaires.

L'extinction diminue pour les altitudes supérieures. Dans l'intervalle de 25 à 35 km d'altitude, elle oscille entre  $5 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  et  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$ ; les valeurs d'incertitude augmentent mais restent inférieures à 50%. Les coefficients d'extinction supérieurs à  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  que l'on retrouve dans la moyenne et haute stratosphère suggèrent la présence permanente de particules jusqu'à 45 km d'altitude. La détection de ces aérosols, dont la nature est discutée dans la section 4.4, se fait dans l'ensemble du globe, à toutes les périodes, sauf en situation d'hiver polaire, lorsque la limite de détection apparaît juste au-dessus de 30 km (section 4.5.1)

La variabilité temporelle du contenu en aérosols est importante dans l'ensemble de la climatologie. Elle est maximale aux hautes latitudes, et décroît graduellement à mesure qu'on se déplace vers les régions équatoriales. De fortes augmentations de l'extinction ont lieu dans la haute stratosphère, par exemple à partir de mai 2006 entre 30°N-50°N, et 30°S-50°S, ou dans l'hémisphère boréal, en août 2003 et à partir de janvier 2004, entre 90°N-70°N. Certaines de ces augmentations aux hautes latitudes peuvent être expliquées par leur possible lien avec différents phénomènes, tels qu'une période d'intenses feux de biomasse en été 2003, et une descente mésosphérique pendant l'hiver 2004 (sections 4.6.1 et 4.6.2).

La Figure 78 montre l'évolution temporelle de l'extinction à 500 nm en fonction de la latitude, à des altitudes comprises entre 60 km et 35 km. À 60 km et à 55 km, les niveaux sont proches ou inférieurs à la limite de détection, sauf pour certaines valeurs élevées qui apparaissent aux moyennes latitudes en 2006. La raison de ces fortes augmentations à de telles altitudes demeure incertaine. On distingue un peu plus bas plusieurs zones où la détection de valeurs d'extinction jusqu'à  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  se fait à 50 km d'altitude. Ces niveaux d'extinction sont bien au-delà de la limite de détection, supérieurs d'au moins un ordre de grandeur, et prédominent à 45 km d'altitude dans l'ensemble de la climatologie, s'étendant entre 50°N et 50°S à toutes les périodes. On remarque également à 45 km des valeurs minimales en décembre 2002 et décembre 2003.

C'est à 40 km que l'on retrouve une plus grande uniformité des valeurs d'extinction, comprises entre  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  et  $2,5 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  à toutes les latitudes et périodes, sauf pendant les hivers polaires. On distingue à nouveau des valeurs particulièrement élevées en août et septembre 2003 en Arctique. À 35 km, les valeurs minimales sont présentes à nouveau en décembre 2002 et décembre 2003.



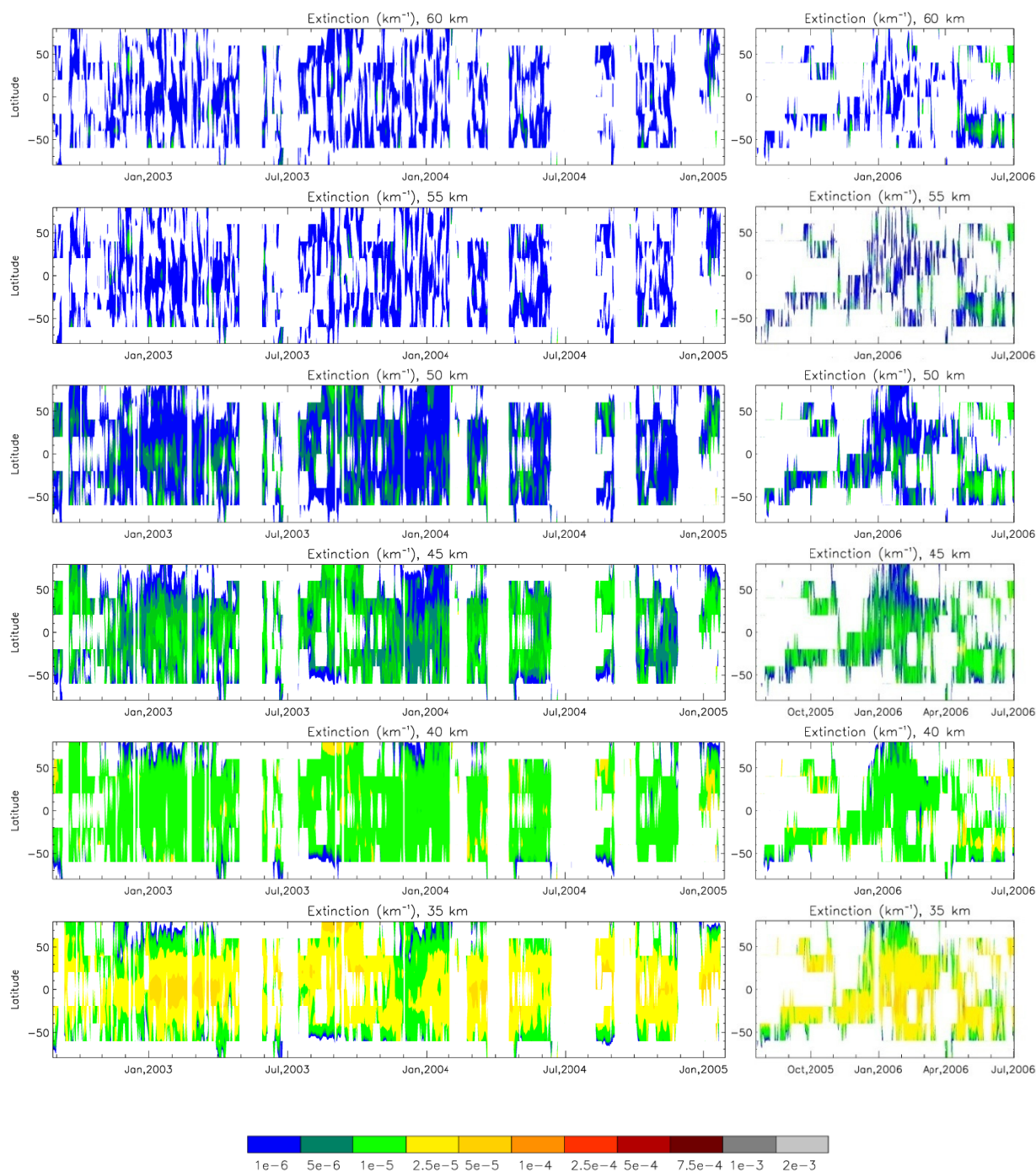


Figure 78. Évolution temporelle des valeurs moyennes par jour (calculées par bandes de 20° latitude) de l'extinction à 500 nm en fonction de la latitude, tracées tous les 5 km entre 60 km (haut) et 35 km d'altitude (bas).

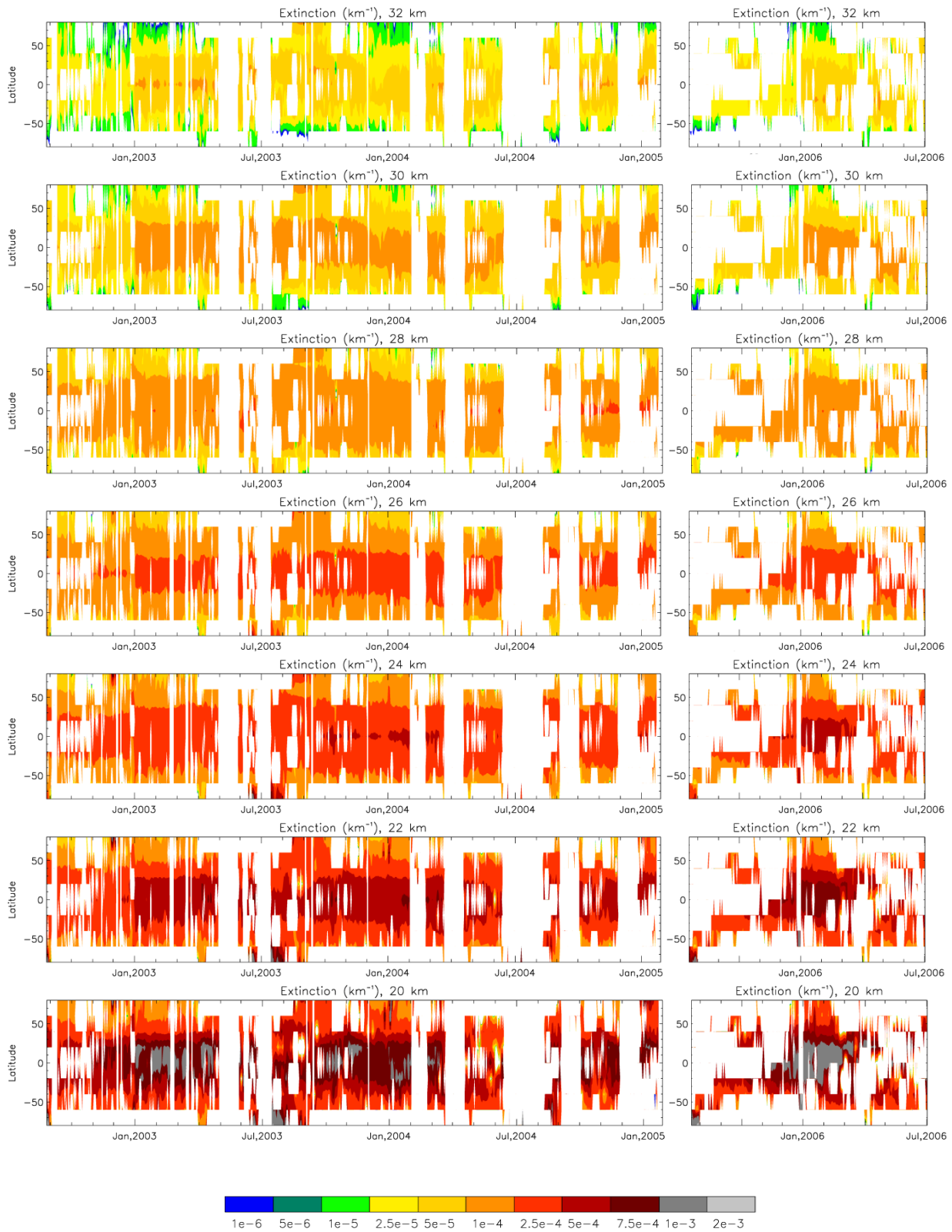


Figure 79. Évolution temporelle des valeurs moyennes par jour (calculées par bandes de 20° latitude) de l'extinction à 500 nm en fonction de la latitude, tracées tous les 2 km entre 32 km (haut) et 20 km d'altitude (bas).



La Figure 79 montre l'évolution temporelle de l'extinction dans la moyenne et basse stratosphère, entre 32 km et 20 km d'altitude, tracée tous les 2 kilomètres. À 32 km on retrouve des coefficients d'extinction aussi élevés en Arctique à la fin de l'été 2003 qu'aux latitudes équatoriales, du fait de l'augmentation déjà mentionnée. Les valeurs plus élevées à cette même altitude apparaissent aux tropiques au début de l'année 2003. La même tendance est visible, et le contraste plus marqué à 30 km, avec une augmentation des coefficients d'extinction d'un facteur 2 entre 30°N et 30°S. Cette hausse soudaine a également été observée dans les données d'extinction à 1020 nm par SAGE II l'année 2003 (Vernier et al., 2009), et est attribuée au changement de phase de l'oscillation quasi-biennale; cet aspect est décrit avec plus de détail dans la section 4.5.

À 28 km d'altitude, les valeurs plus élevées apparaissent autour de l'équateur, d'octobre 2004 à janvier 2005, alors que le maximum à 24 ou 22 km se situe aux tropiques entre septembre 2003 et mars 2004, et à partir de janvier 2006. À 20 km, les altitudes typiques du maximum d'extinction de la couche de Junge sont atteintes aux latitudes équatoriales. Les valeurs sont également élevées en juillet 2003 et à d'autres moments pendant l'hiver antarctique.

Une caractéristique commune à toutes les figures est la faible couverture latitudinale tout au long de l'année 2005, qui se traduit par des résultats moins représentatifs et ne permet pas le suivi de l'extinction aux tropiques.

Bien que les raisons à l'origine des augmentations observées dans la haute stratosphère ne soient pas connues, il paraît clair qu'elles diffèrent de celles qui provoquent des variations aux plus basses altitudes dans la plupart des cas; seule l'augmentation en août 2003 entre 70°N et 90°N semble se produire au même moment à toutes les altitudes. Des épaisseurs optiques ou colonnes de l'extinction à 500 nm ont été calculées d'après la somme de toutes les valeurs d'extinction interpolées (une valeur par jour et par kilomètre) dans différentes bandes d'altitude (Figure 80): une première entre 15 et 30 km pour visualiser les variations dans la basse stratosphère, et une deuxième allant de 30 à 60 km pour visualiser les variations dans la moyenne et haute stratosphère; l'altitude choisie comme valeur limite est 30 km, car c'est celle à laquelle la QBO a été étudiée; enfin, une colonne entre 20 et 60 km a été calculée pour avoir une vue d'ensemble, sans les contributions des plus fortes valeurs aux basses altitudes qui dominent les variations et qui sont interrompues à des altitudes variables.

La colonne entre 15 et 30 km présente de fortes valeurs au pôle sud, et reflètent la présence de nuages stratosphériques polaires jusqu'à une limite d'altitude supérieure d'environ 25 km. Peu de mesures sont disponibles du fait de la faible couverture des mesures en Antarctique. En Arctique, le maximum d'extinction en août-septembre 2003 est à nouveau visible. Les fortes valeurs en janvier 2005 à ces latitudes reflètent un hiver très froid (section 4.5.1). La différence de pression atmosphérique provoque le gradient latitudinal observé. Les valeurs élevées aux tropiques présentent une grande variabilité temporelle, et s'étendent vers de plus hautes latitudes à partir de l'hiver 2005.

Entre 30 et 60 km, il existe une plus grande variabilité temporelle, avec de fortes valeurs pendant la première moitié de l'année 2003, et un minimum en décembre 2003. À partir de l'année 2005, les valeurs maximales se retrouvent aux moyennes latitudes.

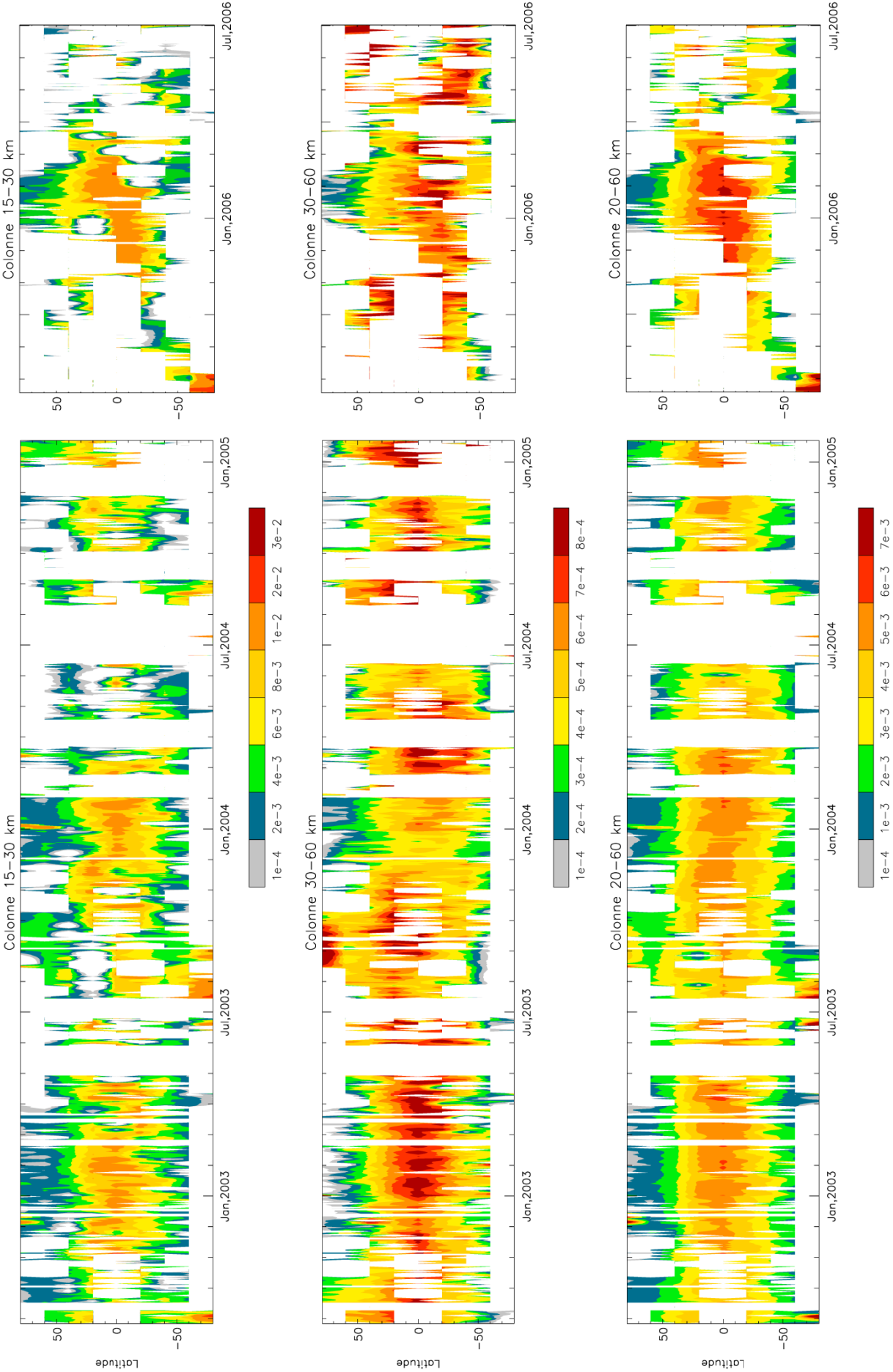


Figure 80. Épaisseur optique calculée à partir des valeurs moyennes de l’extinction à 500 nm entre 15 et 30 km (haut), 30 et 60 km (milieu) et 20 et 60 km (bas).

La colonne entre 20 et 60 km est représentative du contenu global de particules dans l'ensemble de la stratosphère. Les coefficients d'extinction aux plus basses altitudes dominent les valeurs de l'épaisseur optique totale. La Figure 80 montre des valeurs plus faibles de septembre à novembre 2002, et au printemps 2004. Une claire augmentation de ce paramètre est visible à partir des derniers mois en 2005, et mène aux valeurs maximales de la période étudiée, que l'on retrouve globalement entre 30°N et 30°S.

Malgré une couverture latitudinale irrégulière, l'instrument fournit une couverture longitudinale assez homogène. Les Figures 81 à 85 contiennent des cartes d'épaisseurs optiques entre 20 et 60 km. Les valeurs tracées sont les moyennes mensuelles, calculées à partir des moyennes journalières, pour les années 2002 à 2006.

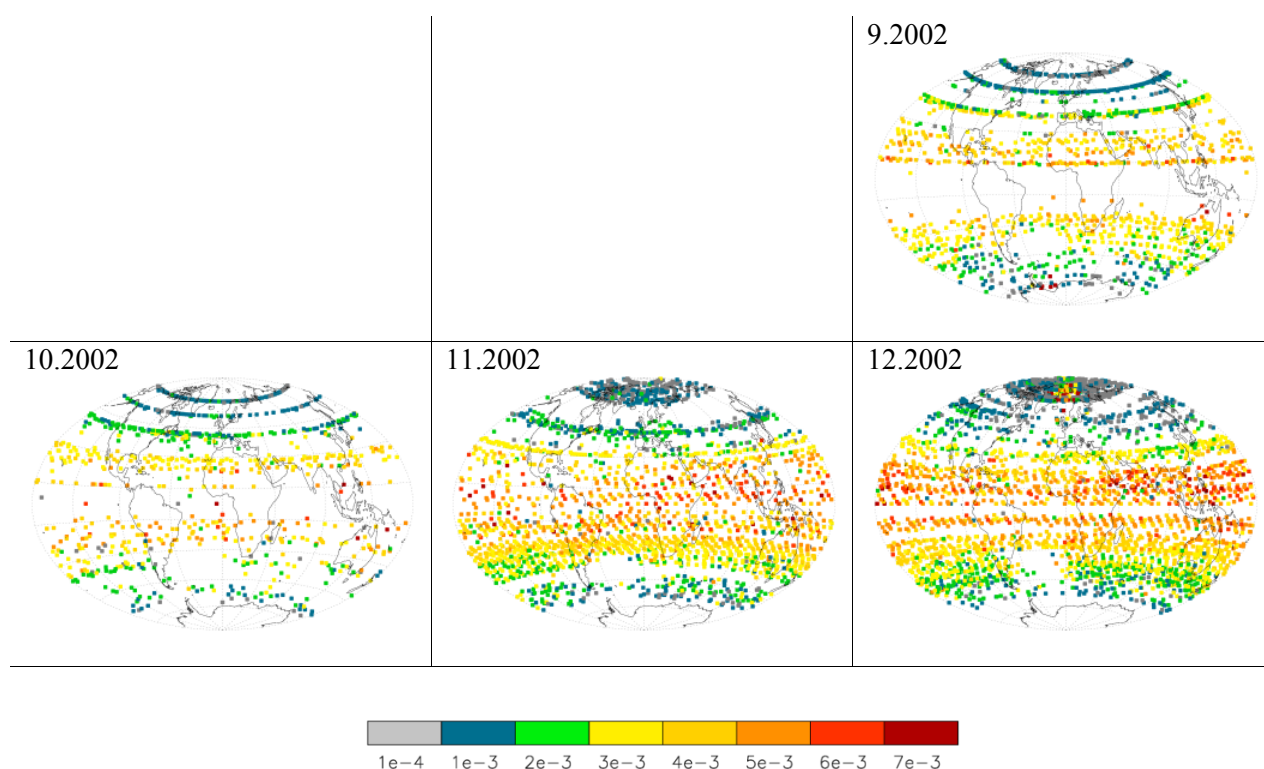


Figure 81. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques entre 20 et 60 km pour l'année 2002.

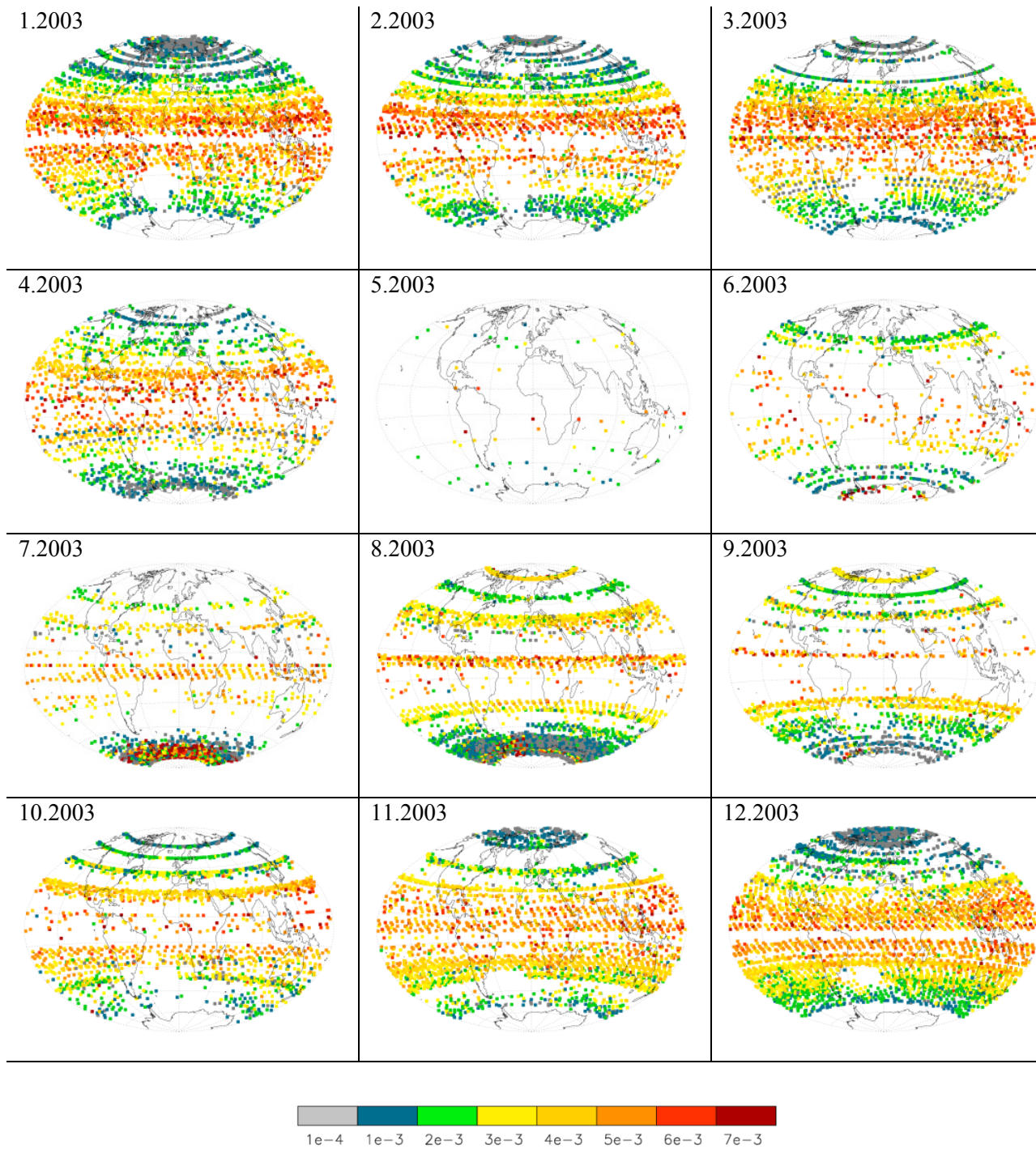


Figure 82. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques entre 20 et 60 km pour l'année 2003.



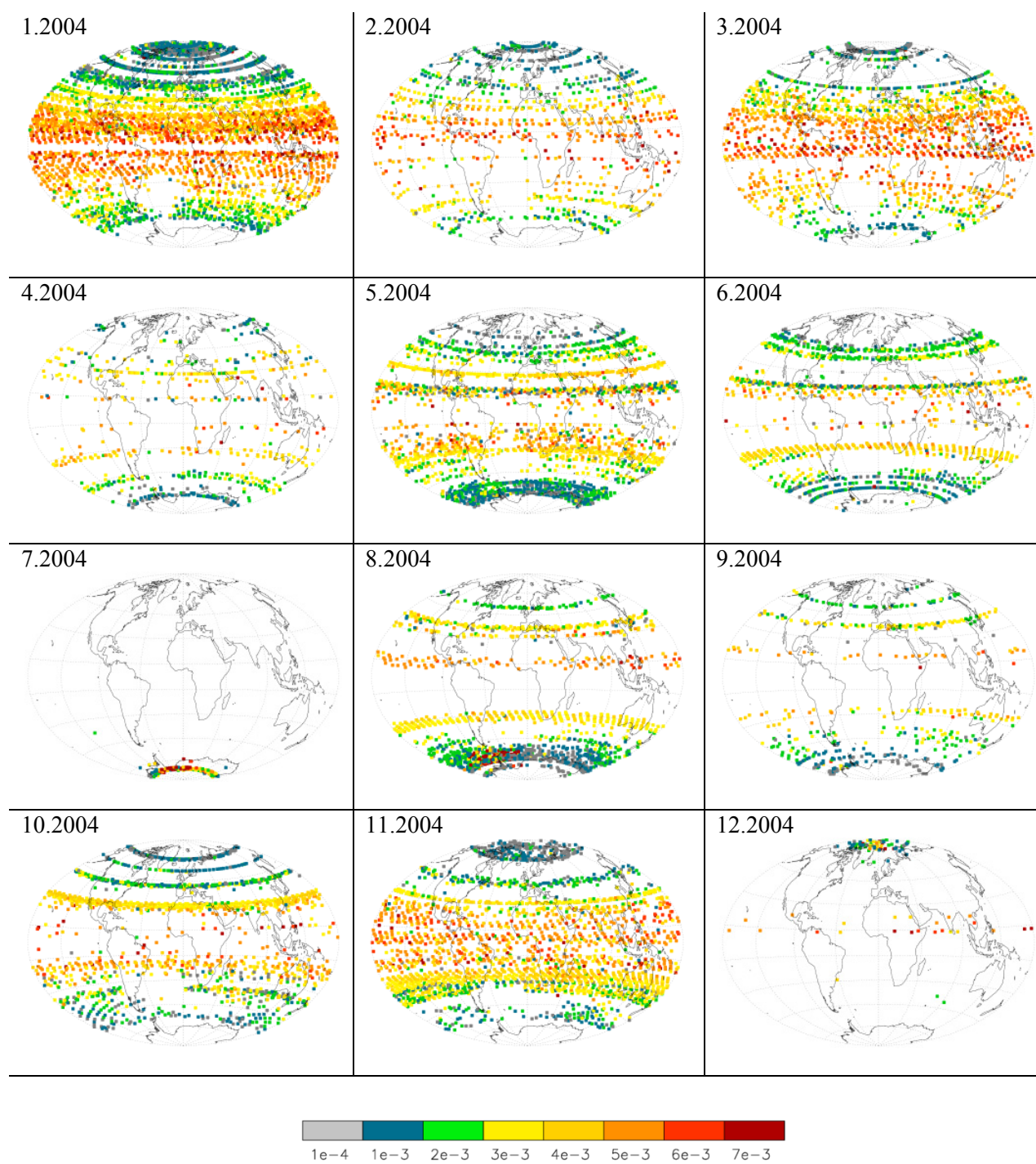


Figure 83. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques entre 20 et 60 km pour l'année 2004.

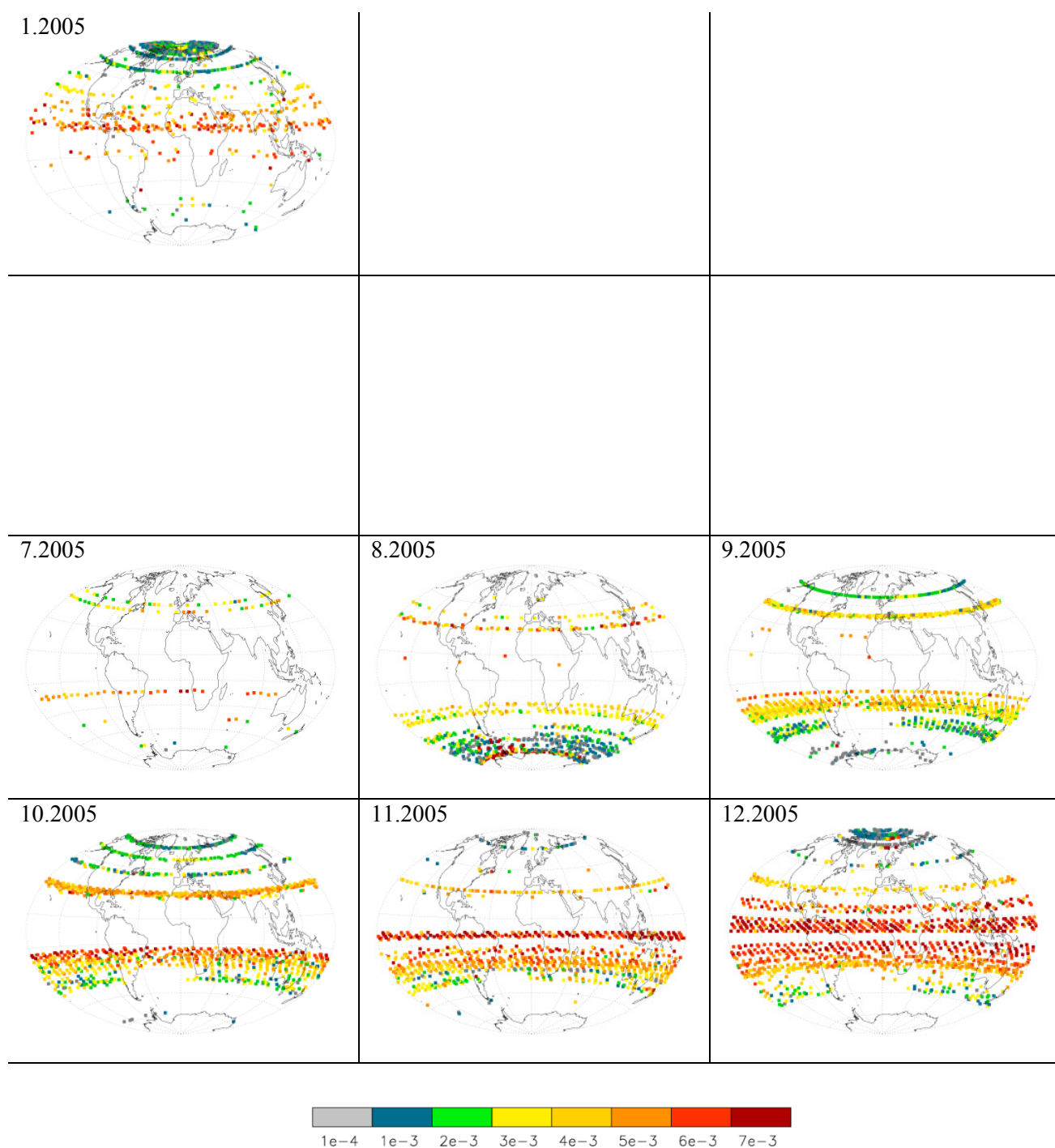


Figure 84. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques entre 20 et 60 km pour l'année 2005.

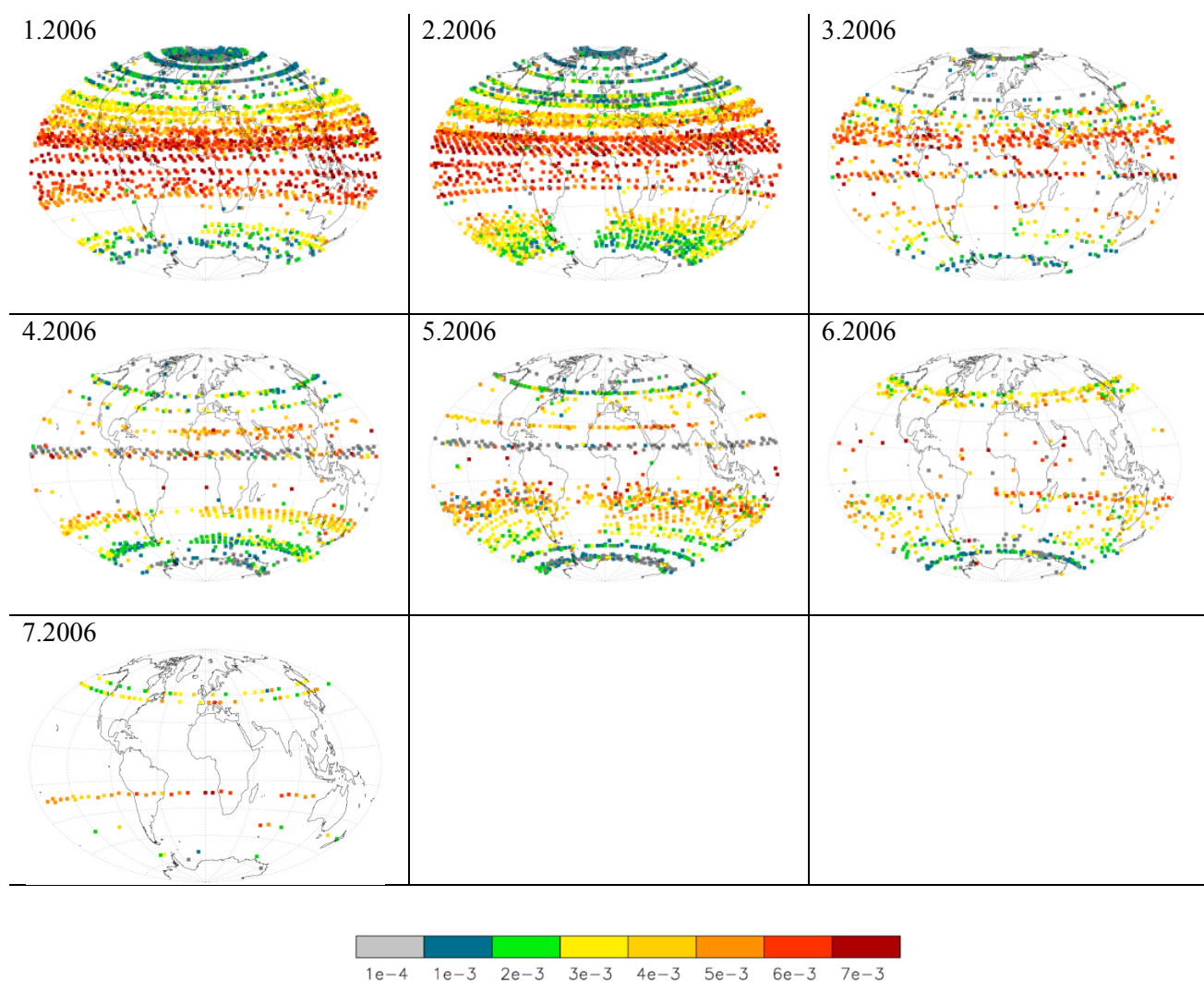


Figure 85. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques entre 20 et 60 km pour l'année 2006.

La Figure 86 montre les variations des moyennes annuelles des valeurs d'extinction à 500 nm à différentes altitudes, calculées tous les kilomètres, entre 25 à 34 km. Malgré l'irrégularité des distributions temporelles, ces figures donnent une idée de l'évolution du contenu moyen d'aérosols dans la moyenne stratosphère. Le Tableau 4-6 recueille les valeurs moyennées par bandes de 10° de latitude, de 30 à 20 kilomètres d'altitude.

La variabilité temporelle de l'extinction dans la période considérée est forte. Les valeurs moyennes maximales à 25 km atteignent  $3,5 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$ ,  $3,8 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$ ,  $4,2 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$ ,  $4,8 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  et  $4,5 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  respectivement en 2002, 2003, 2004, 2005 et 2006.

L'année où le contenu en aérosols est le plus faible est clairement 2002. On observe une nette augmentation en 2003 à toutes les latitudes, pour des altitudes inférieures à 30 km. Les mesures effectuées entre 20°N et 20°S, de 25 km à 30 km augmentent de 5,75% d'une année à l'autre, et de 4,73% si on considère les latitudes entre 10°N et 10°S. L'augmentation est plus importante entre 20 km et 25 km: 10,03% entre 20°N-20°S et 11,61% entre 10°N et 10°S. Les valeurs moyennes augmentent également en 2004 entre 25 km et 30 km (4,41% entre 20°N et 20°S, 6,91% entre 10°N-10°S), mais entre 20 et 25 km les niveaux sont plus faibles qu'en 2003: une diminution de 7,14% (20°N-20°S) et de 4,63% (10°N-10°S).

Les plus fortes augmentations se produisent en 2005, qui est l'année de plus forts coefficients d'extinction entre 20 km et 25 km d'altitude. Dodion et al. (2008) remarquent déjà une augmentation significative par rapport aux valeurs de 2004; outre cela, la première moitié de l'année 2006 représente une diminution par rapport à 2005. Mais les valeurs numériques sont peu significatives étant donné que la distribution temporelle et géographique des données est très irrégulière pendant ces deux années.

En tenant compte des variations interannuelles dans la période août 2002-juillet 2006, en moyenne l'effet global est une augmentation qui oscille autour de 3% aux latitudes tropicales. En considérant uniquement les années 2002, 2003 et 2004, la moyenne est un peu supérieure à 4%. Ces résultats suivent la même tendance que les mesures lidar depuis *Mauna Loa Observatory* (19°N, 34°W), d'après lesquelles le faible contenu en aérosols subit une augmentation de 4,8% dans la période 2000-2009, entre 20 km et 25 km d'altitude (Hofmann et al. 2009).

La Figure 87 présente les moyennes annuelles pour différentes altitudes entre 35 km et 60 km. La variation dans la haute stratosphère est moins dépendante de la latitude que dans la Figure 86, à l'exception des pôles où les valeurs d'extinction sont très faibles en hiver. La variabilité interannuelle est plus faible également, bien qu'en 2005 et en 2006 les valeurs sont de plus en plus élevées, et dépassent largement les valeurs de coefficients d'extinction de  $2 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  à 40 km.

La dissymétrie des Figures 86 et 87 suggère un contenu en aérosols nettement plus élevé dans l'hémisphère nord en 2005, et plus élevé dans l'hémisphère sud en 2006.



	2002	2003	2004	2005	2006	
<b>30 km</b>	1,33	1,33	1,32	1,48	1,40	<b>20°N-10°N</b>
	1,54	1,41	1,60	1,55	1,41	<b>10°N-0°</b>
	1,68	1,50	1,52	1,39	1,22	<b>0°-10°S</b>
	1,44	1,45	1,25	1,51	1,16	<b>10°S-20°S</b>
<b>29 km</b>	1,58	1,69	1,66	1,83	1,76	<b>20°N-10°N</b>
	1,86	1,80	2,00	1,99	1,82	<b>10°N-0°</b>
	2,01	1,88	1,92	1,87	1,60	<b>0°-10°S</b>
	1,75	1,77	1,63	1,91	1,60	<b>10°S-20°S</b>
<b>28 km</b>	1,85	2,06	2,05	2,21	2,20	<b>20°N-10°N</b>
	2,21	2,21	2,45	2,53	2,30	<b>10°N-0°</b>
	2,34	2,31	2,38	2,45	2,09	<b>0°-10°S</b>
	2,07	2,09	2,08	2,32	2,14	<b>10°S-20°S</b>
<b>27 km</b>	2,16	2,48	2,48	2,66	2,72	<b>20°N-10°N</b>
	2,58	2,69	2,95	3,16	2,86	<b>10°N-0°</b>
	2,65	2,77	2,93	3,15	2,72	<b>0°-10°S</b>
	2,41	2,45	2,59	2,75	2,78	<b>10°S-20°S</b>
<b>26 km</b>	2,57	2,95	3,01	3,20	3,32	<b>20°N-10°N</b>
	3,00	3,30	3,52	3,87	3,61	<b>10°N-0°</b>
	2,93	3,29	3,48	3,95	3,48	<b>0°-10°S</b>
	2,80	2,89	3,17	3,28	3,49	<b>10°S-20°S</b>
<b>25 km</b>	3,08	3,52	3,62	3,88	3,98	<b>20°N-10°N</b>
	3,44	3,88	4,14	4,73	4,50	<b>10°N-0°</b>
	3,30	3,89	4,19	4,86	4,33	<b>0°-10°S</b>
	3,30	3,46	3,76	3,98	4,23	<b>10°S-20°S</b>
<b>24 km</b>	3,75	4,20	4,31	4,72	4,62	<b>20°N-10°N</b>
	4,04	4,32	4,74	5,69	5,44	<b>10°N-0°</b>
	3,83	4,63	4,91	5,85	5,16	<b>0°-10°S</b>
	3,93	4,22	4,36	4,87	4,96	<b>10°S-20°S</b>
<b>23 km</b>	4,53	5,03	5,03	5,76	5,27	<b>20°N-10°N</b>
	4,82	5,25	5,35	6,80	6,25	<b>10°N-0°</b>
	4,45	5,47	5,68	6,89	5,81	<b>0°-10°S</b>
	4,72	5,16	5,00	5,95	5,68	<b>10°S-20°S</b>
<b>22 km</b>	5,50	6,10	5,83	6,97	5,92	<b>20°N-10°N</b>
	5,69	6,30	6,07	7,96	6,79	<b>10°N-0°</b>
	5,37	6,53	6,46	8,04	6,21	<b>0°-10°S</b>
	5,81	6,38	5,68	7,17	6,53	<b>10°S-20°S</b>
<b>21 km</b>	6,74	7,47	6,70	8,61	6,46	<b>20°N-10°N</b>
	6,73	7,76	6,81	9,14	7,06	<b>10°N-0°</b>
	7,07	7,83	7,26	9,32	6,52	<b>0°-10°S</b>
	7,49	8,04	6,35	8,51	7,70	<b>10°S-20°S</b>
<b>20 km</b>	8,20	8,82	7,28	10,5	6,45	<b>20°N-10°N</b>
	8,16	9,63	7,61	10,3	7,24	<b>10°N-0°</b>
	9,75	8,78	8,14	10,8	7,04	<b>0°-10°S</b>
	9,41	9,76	6,69	9,21	8,89	<b>10°S-20°S</b>

Tableau 4-6. Valeurs moyennes annuelles des coefficients d'extinction ( $\times 10^4 \text{ km}^{-1}$ ) dans les bandes de  $10^\circ$  de latitude comprises entre  $20^\circ\text{N}$  et  $20^\circ\text{S}$ , pour différentes altitudes, de 2002 à 2006.

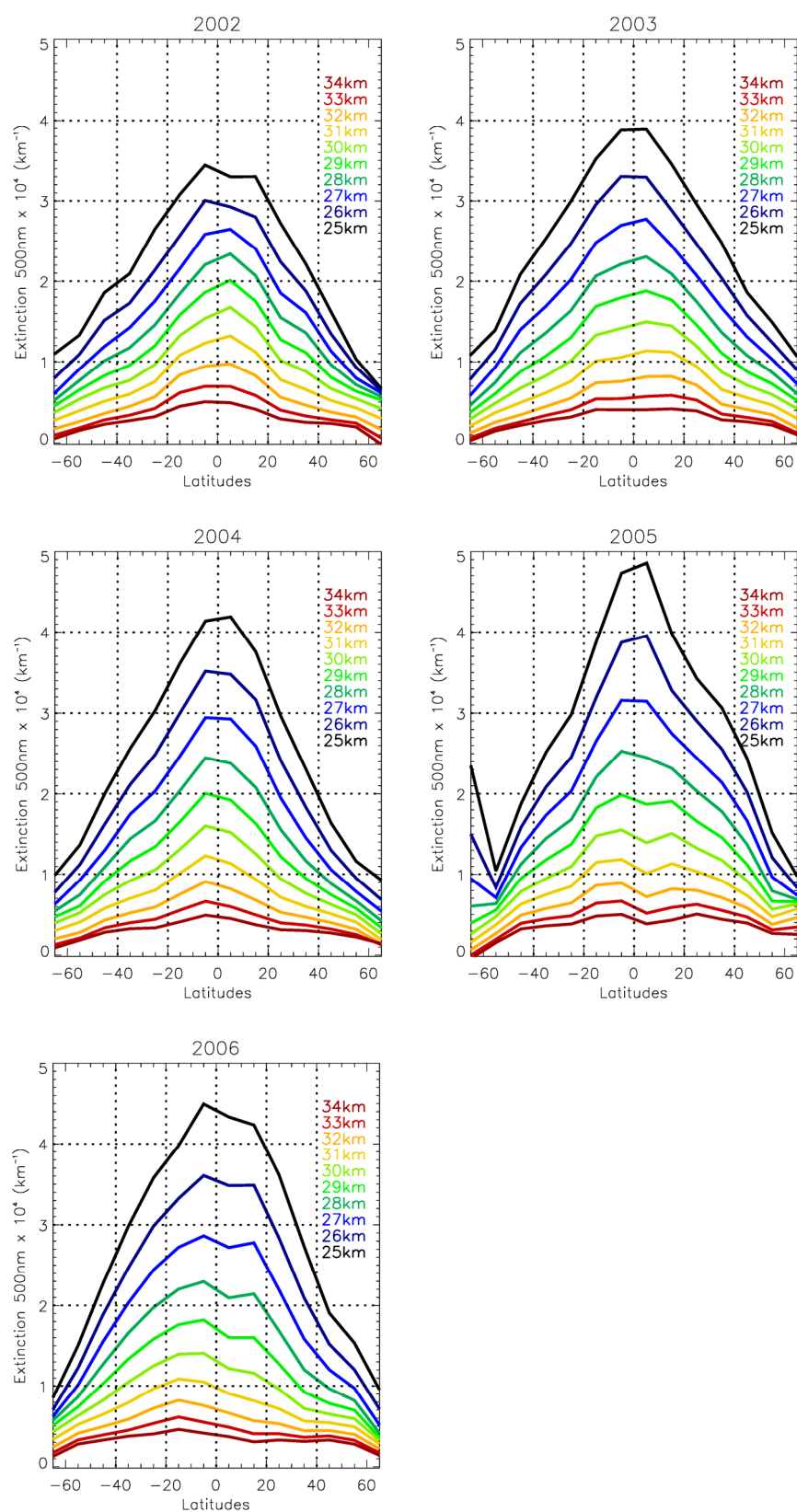


Figure 86. Contenu global moyen d'aérosols aux périodes disponibles chaque année, de 25 km (trait noir) à 34 km (rouge) d'altitude.

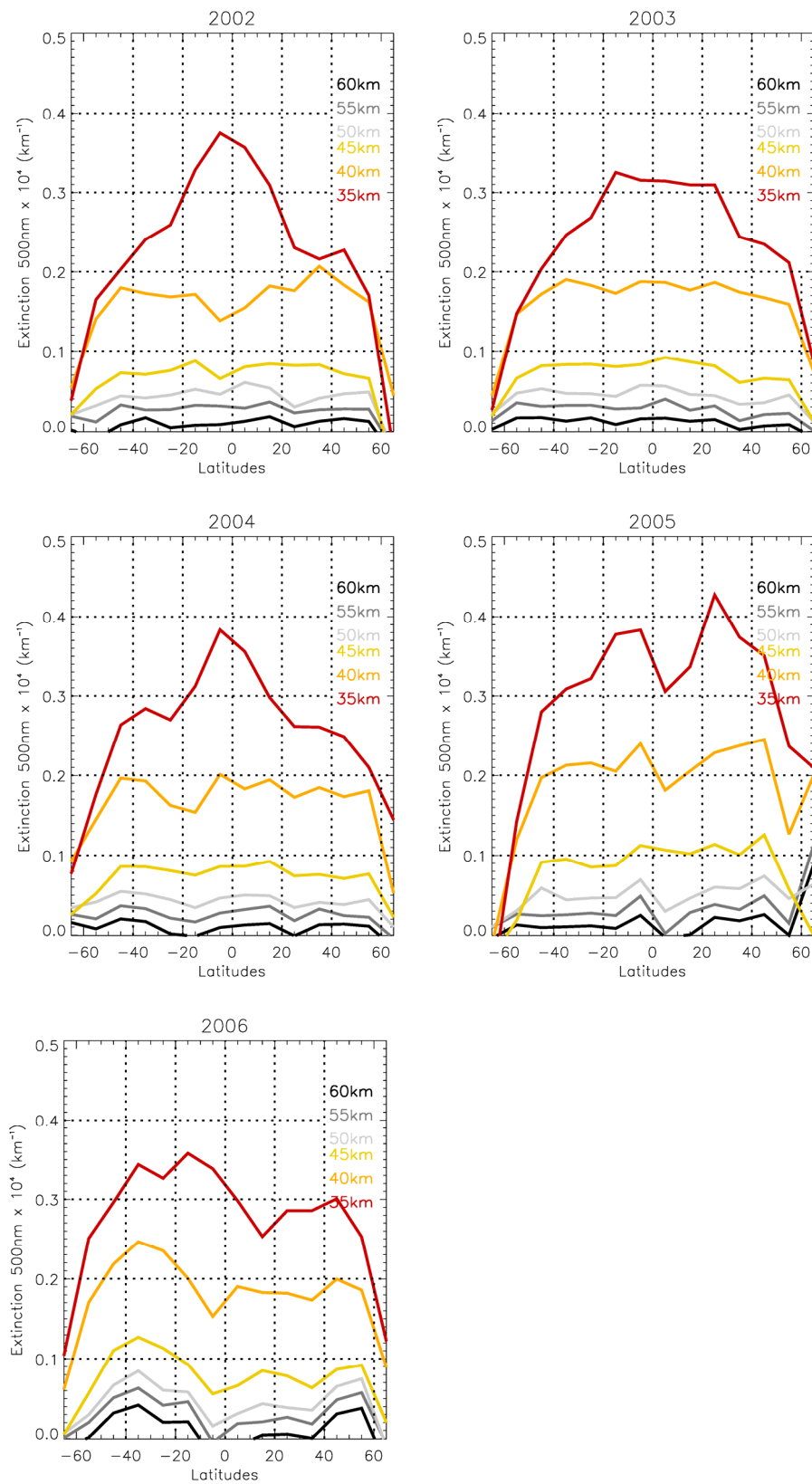


Figure 87. Contenu global moyen d'aérosols aux périodes disponibles chaque année, de 35 km (trait rouge) à 60 km (noir) d'altitude.

## 4.4 Nature des aérosols

La composition chimique des aérosols stratosphériques dits aérosols de fond, qui forment la couche de Junge dans la basse stratosphère, est relativement bien connue (section 1.6.3). Il s'agit d'un mélange liquide  $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$  en proportions d'environ 75%-25%. Ils forment un réservoir tropical (section 4.5), et le transport des masses d'air depuis les tropiques est la principale source de ce type d'aérosols dans la stratosphère aux moyennes et hautes latitudes.

Dans la basse stratosphère, les éruptions volcaniques sont responsables de variations temporelles telles que celles qui sont observées. Bien que la stratosphère soit considérée complètement libre d'aérosols produits par les éruptions du siècle dernier depuis 1999 (SPARC, 2006), quelques éruptions mineures ont eu lieu dans la période étudiée (Tableau 4-7), et maintiennent un apport continu en aérosols et en précurseurs.

Volcan	Date
Ruang (Indonésie), 2°N 125°E	25 septembre 2002
Reventador (Équateur), 0°, 77°W	3 novembre 2002
Manam (Papouasie Nouvelle-Guinée), 4°S, 145°E	27 janvier 2005
Soufrière (Guadeloupe), 16°N, 62°W	20 mai 2006

Tableau 4-7. Éruptions volcaniques mineures ayant eu lieu dans la période étudiée.

L'origine volcanique des augmentations de l'extinction pendant la deuxième moitié de l'année 2005 a été suggérée par Vanhellemont et al. (2010), car suite aux éruptions du volcan Manam au mois de janvier, des couches d'aérosols ont été détectées entre 18 km et 20 km par lidar à bord d'un bateau vers 0°-2°N, 156°E début février et 7°N-9°N, 156°E vers mi-février. Les éruptions de Ruang et Reventador seraient en partie responsables de l'augmentation observée en 2003 (Thomason et al., 2008, Niwano et al., 2009).

D'autres sources d'aérosols sulfatés pourraient expliquer ces variations, comme par exemple l'augmentation des différents types d'émissions de  $\text{SO}_2$  et OCS dans la troposphère (Hofmann et al., 2009). Les feux de biomasse participent également au contenu global d'aérosols dans la basse et moyenne stratosphère, mais le type de particules émises dans ce cas est carboné (majoritairement des suies, section 1.6.5). Des feux intenses ont eu lieu par exemple en janvier 2003 en Australie (Fromm et al., 2006), entre avril et juillet 2003 en Russie orientale (Nedelec et al., 2005), ou en septembre 2003 à l'ouest du Canada (Tétard, 2008).

Les cartes d'imagerie satellitaire fournies par l'instrument MODIS (*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*) disponibles sur <http://terra.nasa.gov/About/MODIS/> sont utiles pour estimer l'intensité des feux dans différentes régions du globe, et ont été comparées aux données d'extinction, mais sans résultat concluant. Aucune coïncidence ne permet d'identifier clairement des couches d'aérosols provenant de feux, car celles-ci sont trop fines pour être détectées par GOMOS, dont la ligne de visée intègre des dizaines ou centaines de kilomètres, et lisse les possibles augmentations locales.

La détection de valeurs d'extinction relativement élevées dans la moyenne et haute stratosphère suggère une nature différente des particules liquides sulfatées, car les conditions de pression et température ne sont pas aptes à la formation de solutions d'acide sulfurique à de telles altitudes. Plusieurs études ont démontré la présence de particules solides de diverses origines; il peut s'agir notamment de particules carbonées (section 1.6.5) en provenance de la troposphère, ou de matière interplanétaire qui subit une désintégration lors de son entrée dans l'atmosphère, puis recondense et forme des particules de fumée météoritique (section 1.6.6).

La dépendance spectrale de l'extinction informe sur la nature des particules et sur leur distribution en taille. Une restriction du domaine spectral de 400 à 675 nm permet d'ailleurs d'obtenir des résultats plus précis que lorsque l'on prend en compte la région UV du spectre (section 3.1.1). La loi d'Angström,  $\lambda^{-\alpha}$ , est incapable de reproduire l'extinction par des particules qui exhibent une dépendance spectrale différente d'une décroissance monotone (section 3.1.2.3, page 75). Dans le but d'étudier la dépendance spectrale, un paramètre déjà introduit par Renard et al. (2008b), appelé indice de couleur (*color index*, *CI*) est calculé d'après la formule 4.2, où la sommation dans le dénominateur se fait pour les longueurs d'onde entre 400 nm et 675 nm, tous les 25 nm.

$$CI = \frac{\text{Ext}_{400} - \text{Ext}_{675}}{\sqrt{\sum_{400}^{675} \text{Ext}^2}} \quad (4.2)$$

Les contours de l'indice de couleur, tracés à partir des valeurs moyennes journalières pour chaque bande 20° de latitude, sont présentés dans les Figures 88 et 89, pour des altitudes allant de 10 à 50 km. Seulement les valeurs auxquelles le coefficient d'extinction est supérieur à  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  sont tracées, car pour des valeurs d'extinction plus faibles les résultats du CI sont imprécis; une moyenne glissante sur trois jours est appliquée. La figure aux latitudes comprises entre 70°S et 90°S n'a pas été tracée car les mesures sont peu nombreuses.

L'échelle de couleur représente les valeurs du CI comprises entre -0.4 et 0,25 :

- Les différents niveaux de bleu désignent des valeurs supérieures à 0,15, et résultent d'une forte dépendance spectrale (l'extinction diminue avec la longueur d'onde) en présence de petites gouttelettes ou de très petites particules solides, dont le diamètre est inférieur à la longueur d'onde des mesures (plus proches de la diffusion Rayleigh que de la diffusion de Mie). Tel est le comportement spectral des aérosols de fond (Stevermer et al., 2000).
- Le gris correspond à des valeurs de CI entre 0 et 0,15, et reflète la présence de particules ayant une faible dépendance spectrale, dont les coefficients d'extinction sont quelque peu plus forts dans le bleu, comme c'est le cas des particules carbonées (Bergstrom et al., 2002).
- Orange et jaune apparaissent pour des valeurs négatives de l'indice de couleur, lorsque l'extinction augmente avec la longueur d'onde. Ce comportement spectral est typique de particules interplanétaires ou astéroïdes qui possèdent une bande d'absorption centrée autour de 650 nm et/ou une combinaison de bandes spectrales centrées autour de 600 et 670 nm (Renard et al., 2005 et références associées). La Figure 46b (profil individuel du 1<sup>er</sup> janvier 2004 à 20°N montrant la dépendance spectrale de l'extinction) montre un maximum d'extinction centré vers 30 km, et constitue un exemple de structure avec un indice de couleur fortement négatif.

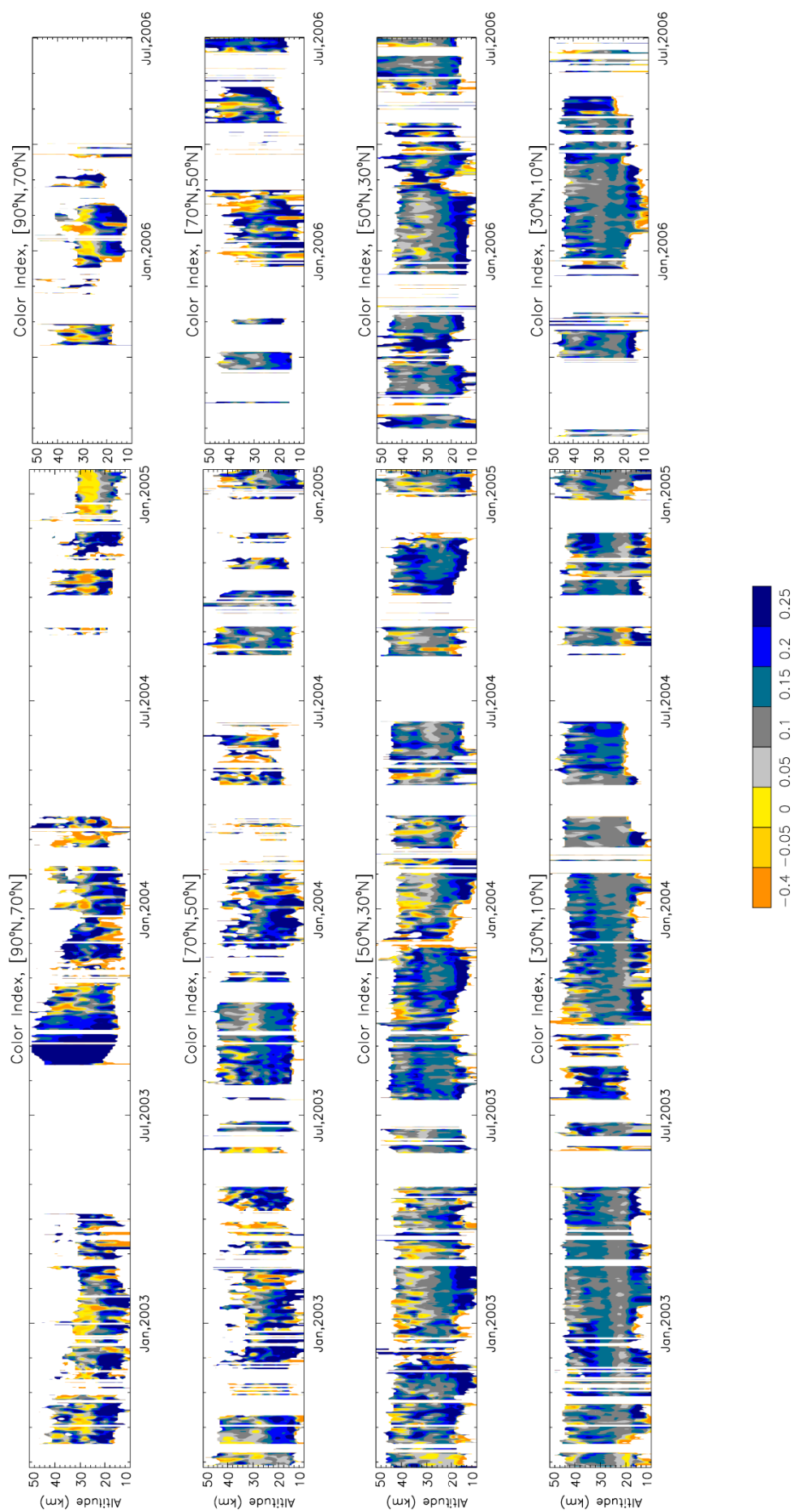


Figure 88. Indice de couleur entre 10 et 50 km, aux latitudes 90°N-70°N, 70°N-50°N, 50°N-30°N et 30°N-10°N, pour la période allant d'août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.

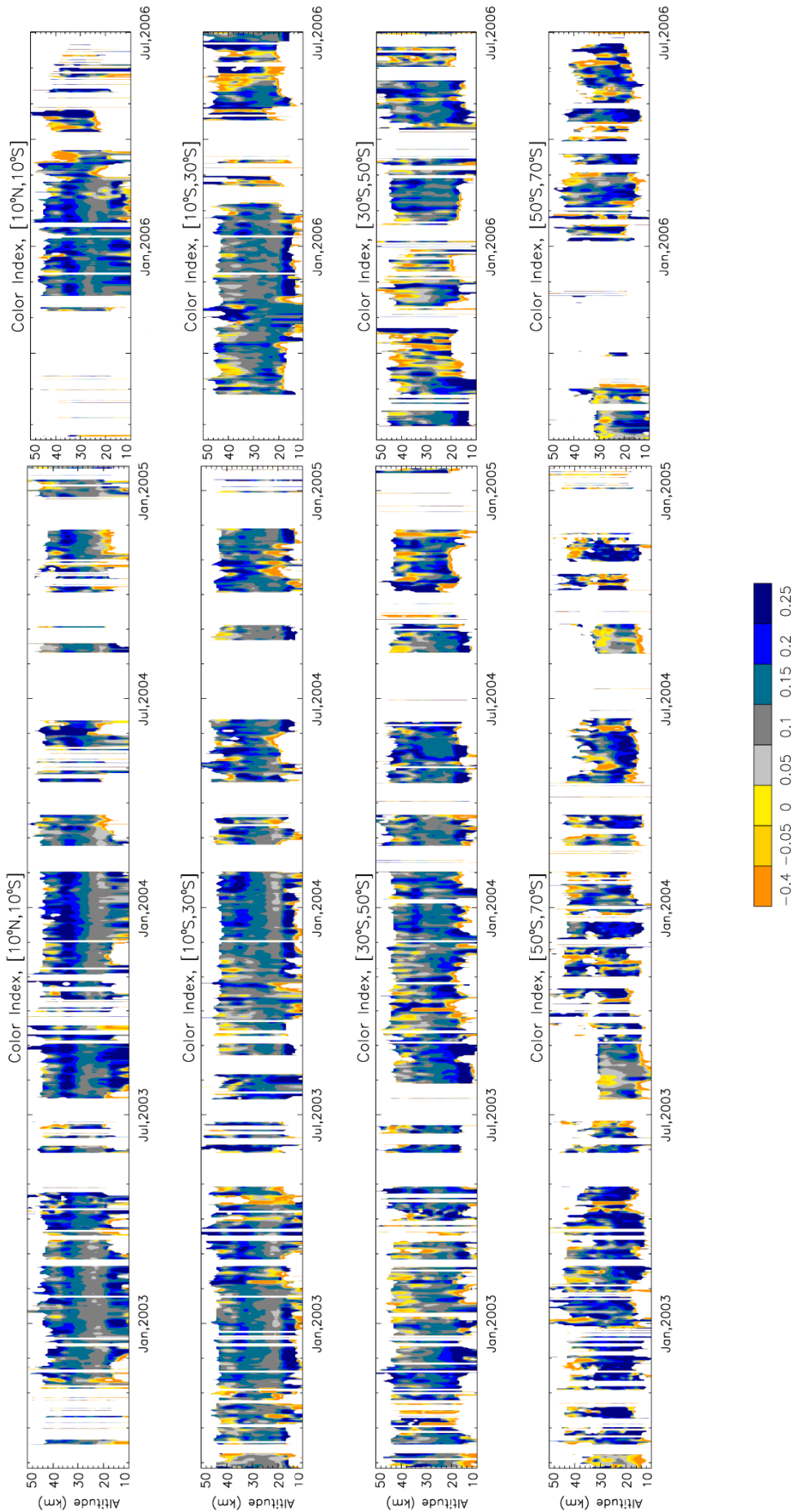


Figure 89. Indice de couleur entre 10 et 50 km, aux latitudes  $10^{\circ}\text{N}$ - $10^{\circ}\text{S}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $30^{\circ}\text{S}$ ,  $30^{\circ}\text{S}$ - $50^{\circ}\text{S}$  et  $50^{\circ}\text{S}$ - $70^{\circ}\text{S}$ , pour la période allant d'août 2002 à janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006.



Dans les Figures 88 et 89, les valeurs de l'indice de couleur qui sont supérieures à 0,25 autour de 20 km à toutes les latitudes reflètent la présence de la couche de Junge. Des valeurs très positives au-dessus des tropiques, entre 30 km et 40 km, et au moment de l'augmentation de l'extinction en août et septembre 2003 pourraient indiquer la présence de petites particules solides (d'après l'altitude à laquelle elles se trouvent et leur comportement spectral).

L'indice de couleur prend des valeurs proches de zéro durant plusieurs mois dans des structures horizontales ou couches situées au-dessus de 20 km, et autour de 30 km et 40 km. Ces couches sont particulièrement bien définies aux intervalles de latitude de 30°N à 10°N, de 10°N à 10°S et de 10°S à 30°S, où l'estimation de l'incertitude de l'extinction varie entre 5% et 25% (Figure 74, page 118). Parfois plusieurs structures coexistent à différentes altitudes dans la même bande de latitude.

Il existe une différence significative entre les contours qui représentent les latitudes tropicales et intertropicales et les contours aux moyennes et hautes latitudes. Globalement, on observe plus de variabilité et plus de valeurs négatives vers les hautes latitudes.

Autour de 40 km les coefficients d'extinction sont faibles mais au-delà de la limite de détection de la méthode d'analyse; pour les valeurs d'extinction supérieures à  $1 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  (limite inférieure pour le calcul de l'indice de couleur), les incertitudes estimées de l'extinction sont généralement comprises entre 25% et 50%, mais sont peu variables (Figures 72, 74 et 76). Les valeurs très négatives de l'indice de couleur suggèrent la présence de particules de grand diamètre (probablement supérieur à 1  $\mu\text{m}$ ) à toutes les latitudes.

#### 4.4.1 Particules météoritiques

D'après les travaux qui viennent confirmer l'hypothèse formulée par Mossop (1963), qui suggère la présence de particules d'origine extra-terrestre parmi les aérosols stratosphériques (section 1.6.6), et les valeurs d'indice de couleur que l'on retrouve notamment aux moyennes et hautes latitudes, il est probable que les grosses particules solides qui semblent être détectées dans la haute stratosphère soient effectivement d'origine interplanétaire. Ce résultat paraît cohérent avec l'apport continu de particules depuis la haute atmosphère par désintégration météoritique; cependant, la sédimentation des micrométéorites de plus grande taille n'apparaît pas de façon évidente dans les contours: on observe plutôt des épisodes de rapides apparitions et disparitions.

L'extinction à ces altitudes peut indiquer la présence de moins grandes particules, dont la dépendance spectrale produit des valeurs de CI moins négatives. D'après le dernier rapport SPARC (2006), la matière interplanétaire pourrait séjourner dans la stratosphère pendant 12 à 14 mois. La sédimentation des particules et leur transport jusqu'à la stratosphère ont lieu aux latitudes polaires par la circulation générale, notamment en hiver à l'intérieur du vortex. Ceci pourrait expliquer la tendance observée dans la Figure 88 en hiver arctique par exemple. Les mesures effectuées par Curtius et al. (2005) à 19 km d'altitude révèlent des concentrations de particules deux fois plus importantes à l'intérieur qu'à l'extérieur du vortex, ce qui suggère la nucléation hétérogène d'aérosols par condensation de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  et  $\text{H}_2\text{O}$  ayant comme support des particules météoritiques. Des études de modélisation antérieures suggèrent déjà ce type de nucléation (e.g. Zhao et al., 1995).



#### 4.4.2 Aérosols carbonés

La faible dépendance spectrale observée dans les couches horizontales permanentes et bien définies aux tropiques -et plus irrégulières aux moyennes latitudes- est typiquement la signature spectrale des suies. Autour de 20 km, la grande stabilité de ces couches et les variations de couleur observées dans les contours pourraient être dues à des mélanges de suies et d'aérosols sulfatés.

L'indice de couleur prend des valeurs proches de zéro durant plusieurs mois dans des structures horizontales ou couches situées au-dessus de 20 km, et autour de 30 km et 40 km. Ces couches sont particulièrement bien définies aux intervalles de latitude de 30°N à 10°N, de 10°N à 10°S et de 10°S à 30°S, où l'estimation de l'incertitude de l'extinction varie entre 5% et 25% (Figure 74, page 118). Parfois plusieurs structures coexistent à différentes altitudes dans la même bande de latitude.

Les valeurs positives au-dessus de 30 km, visibles par exemple dans la période allant de juillet 2003 à février 2004 entre 10°N-10°S, reflètent une forte dépendance spectrale qui peut être justifiée uniquement par des petites gouttelettes ou des particules solides de diamètre inférieur à la longueur d'onde. D'après l'altitude à laquelle elles se trouvent, ces valeurs pourraient être dues à des suies isolées, distribuées en couches fines.

Le moyen de transport de ces suies en provenance de la troposphère n'est pas connu avec précision. La convection ou la circulation diabatique sont des mécanismes remis en question, car les températures à la tropopause sont suffisamment basses pour la formation de particules de glace; il est donc probable que les suies présentes dans l'air ascendant agissent comme noyaux de condensation aux particules de glace et soient alors éliminées avant l'injection dans l'air stratosphérique. D'autres possibilités sont la pyro-convection, qui contribue à l'échange troposphère-stratosphère (Fromm et al., 2005), et une autre forme de transport décrite par Rohatschek (1996), qui démontre de façon théorique qu'un certain type de photophorèse, appelé gravito-photophorèse, peut contribuer à la lévitation de particules absorbantes lorsqu'elles sont illuminées par le rayonnement solaire. Ainsi, l'irradiation des particules pourrait produire un mouvement ascendant et prolonger le temps de résidence de certains types d'aérosols, notamment ceux ayant des géométries irrégulières comme les suies. Les calculs de l'auteur montrent un intervalle de pressions dans lequel le mécanisme est particulièrement efficace, des pressions correspondant à des altitudes entre 2 km et 70 km, limite supérieure qui était considérée précédemment comme impossible à atteindre par des aérosols d'origine terrestre.

#### 4.4.3 Comparaison à des mesures in situ

Dans la période allant de juin 2008 à mai 2010, le compteur de particules STAC fut embarqué à bord de 14 vols sous ballons stratosphériques, réalisés à des latitudes équatoriales en été à Térésina (Brésil, 67°N, 21°E), et en situations d'été et de printemps polaire à Kiruna (Suède, 5°S, 42°W). Les altitudes maximales atteintes par les nacelles varient entre 14 hPa et 2 hPa (environ 30 km et 42 km), ce qui permet d'échantillonner la variabilité verticale du contenu de particules lors de la montée et la descente.

La Figure 90 montre les distributions en taille pour différentes gammes de tailles entre 0,40-0,45  $\mu\text{m}$  et 0,30-0,35  $\mu\text{m}$ , et jusqu'à 2  $\mu\text{m}$  ou 5  $\mu\text{m}$ . Dans le premier cas (à gauche), une augmentation pour toutes les gammes de taille apparaît autour d'environ 30 km, entre 20 hPa et 10 hPa. La même situation est rencontrée aux mêmes latitudes, au mois d'août de la même année, juste au-dessus de 30 km. Ces augmentations sont interprétées comme étant produites par des particules météoritiques. Dans le vol qui eut lieu pendant le printemps arctique (à droite dans la Figure), les augmentations sont seulement détectées pour les petites gammes de taille, au-dessus de 50 hPa (environ 21 km). Leur extension verticale varie de quelques centaines de mètres à moins de 2 km, et leur extension horizontale est estimée être de quelques dizaines à quelques centaines de kilomètres.

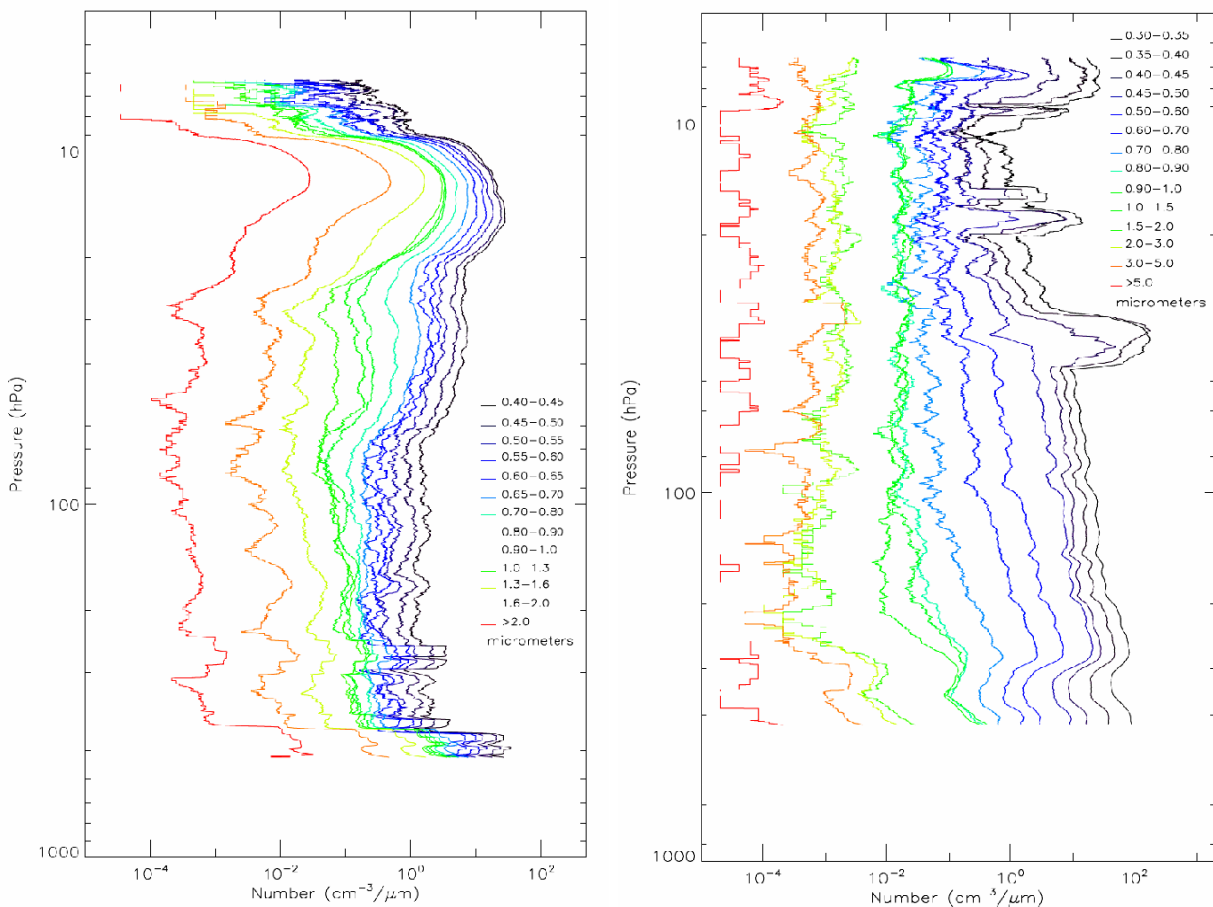


Figure 90. Distributions en taille des aérosols dans la nuit du 19-20 juin 2008 vers 5°S (gauche) et le 9 avril 2010 vers 67°N (droite), Renard et al. (2010a).

Des couches comme celles-ci, plus ou moins fines et plus ou moins étendues sont détectées dans la moyenne stratosphère dans la plupart des vols, y compris celui qui eut lieu en mai 2010 à Kiruna jusqu'à 42 km d'altitude.

Bien que les mesures in situ de STAC ne puissent pas être comparées directement aux résultats de GOMOS, car celui-ci intègre des dizaines ou centaines de kilomètres, elles indiquent une grande variabilité du contenu en aérosols au-dessus de 20 km, et particulièrement autour de 30 km, et sont donc globalement en bon accord avec les observations de GOMOS.

## 4.5 Interprétation dynamique

Des moyennes saisonnières de l'extinction à 500 nm sont présentées dans la Figure ci-dessous, pour des bandes de 10° de latitude :

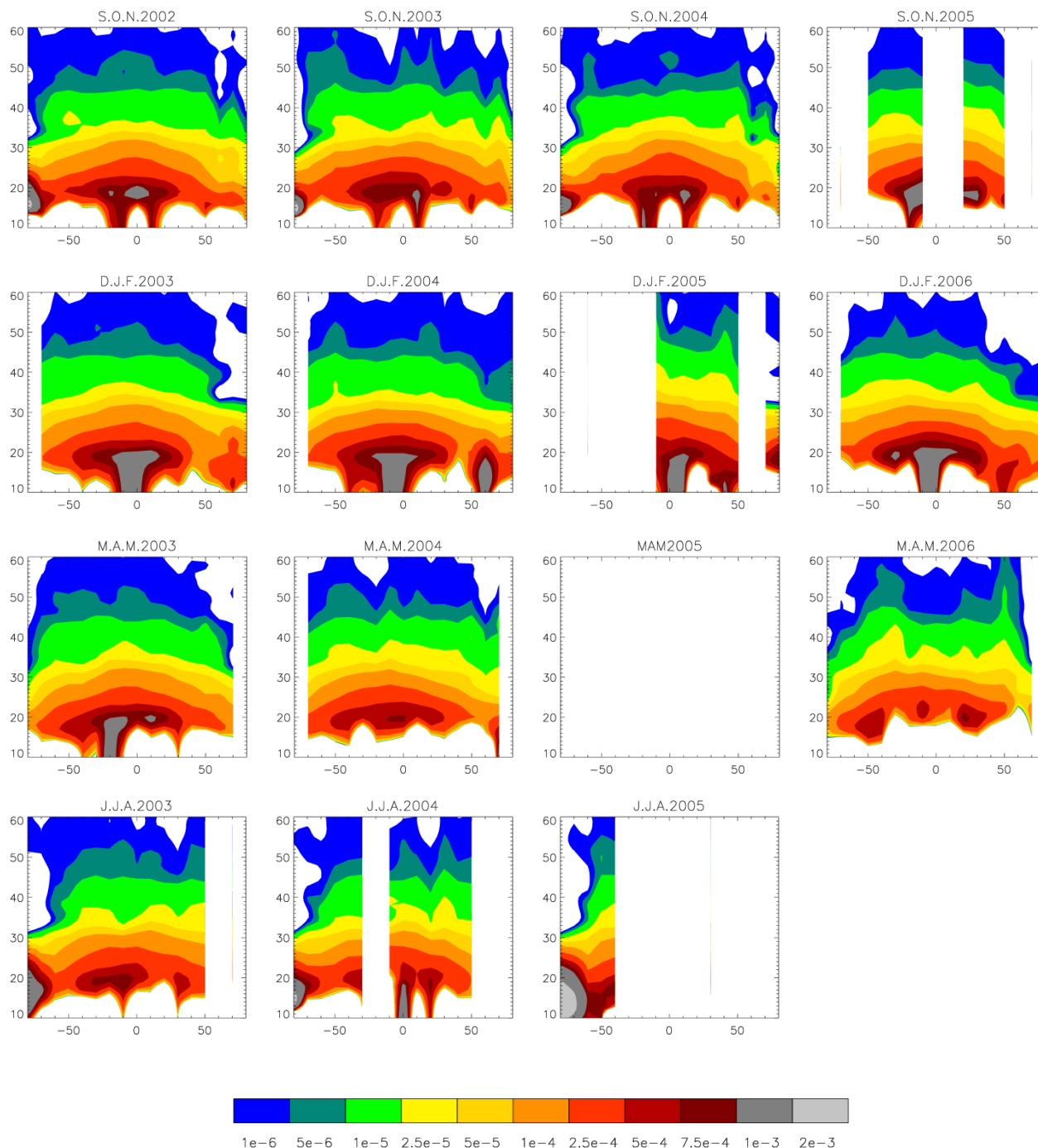


Figure 91. Moyennes zonales de l'extinction ( $km^{-1}$ ) à 500 nm pour les différentes saisons. L'altitude en ordonnées varie de 10 km à 60 km, en abscisses sont tracées les latitudes.

Les moyennes mensuelles ont été calculées à partir des moyennes journalières d'extinction (une valeur tous les kilomètres de 10 à 60 km d'altitude, pour des bandes de 10° de latitude), avec un critère d'après lequel au minimum 7 jours doivent être disponibles pour obtenir une valeur mensuelle. Cette procédure est nécessaire pour obtenir des valeurs représentatives malgré la distribution irrégulière des données. Des moyennes saisonnières sont alors calculées en moyennant trois mois: DJF 2004 pour décembre 2003, janvier et février 2004, et ainsi de suite.

La Figure 91 montre globalement peu de variabilité, à part dans les latitudes polaires où on distingue les nuages stratosphériques polaires, qui sont parfois assez bien localisés. Aux tropiques, les valeurs d'extinction augmentent fortement au-dessus de la tropopause, et atteignent des valeurs maximales au-dessus de l'équateur, autour de 20 km, endroit où la fréquence d'observation de nuages cirrus est élevée. Cette région est également représentative du transport des masses d'air depuis la tropopause vers la stratosphère, qui conduit à la formation d'un réservoir tropical, car les aérosols ont tendance à résider entre 20°N et 20°S (Trepte et Hitchman, 1992, Grant et al., 1996, Wang et al., 1998). La courbure dans les figures, ou *forme parasol* apparaît du fait de l'effet variable de la pression selon les latitudes, mais désigne également le transport des particules, se déplaçant graduellement vers les latitudes polaires par la circulation de Brewer-Dobson.

Le comportement est différent pour les altitudes supérieures à 30 km. L'effet parasol n'est plus observé, et des tendances saisonnières montrent le vidage en aérosols de la haute et moyenne stratosphère pendant les hivers polaires. Cette tendance est évidente dans les moyennes saisonnières qui incluent les mois de juin, juillet et août en Antarctique et décembre, janvier et février en Arctique (dans la figure correspondante à l'hiver arctique de 2004, cet effet est masqué par l'augmentation qui a lieu au début du mois de janvier). Les valeurs d'extinction demeurent faibles jusqu'au printemps (voir par exemple Figure 91 pour les mois de mars, avril et mai 2003 en Arctique, et septembre, octobre et novembre 2002, 2003 ou 2004 en Antarctique), et ensuite une récupération rapide vers les niveaux d'extinction typiques a lieu.

La distribution des aérosols varie de façon significative en fonction de la phase de l'oscillation quasi-biennale: une ascendance est observée pendant les phases d'est, et la subsidence prédomine en phase ouest. Dans la période étudiée, les phases est de la QBO à 30 km d'altitude comprennent les périodes allant de septembre 2002 à juin 2003, et de septembre 2004 à septembre 2005. Les phases ouest vont de juillet 2003 à août 2004, et d'octobre 2005 à octobre 2006 (voir Figure 5, page 24).

La Figure 92 montre les valeurs moyennes d'extinction pour les mois de janvier 2003 à janvier 2006. La ligne noire en pointillés indique l'altitude de transition d'une phase à l'autre de la QBO, les lettres E et W indiquent phase *easterly* et *westerly*. Aux latitudes équatoriales, lors de la phase d'est, les contours présentent une élévation aux altitudes supérieures à 25 km pendant les mois de janvier 2003 et janvier 2005, et aux altitudes inférieures à 25 km en janvier 2004 et inférieures à 28 km en janvier 2006. Les phases d'ouest sont caractérisées par une subsidence qui produit un aplatissement des contours.

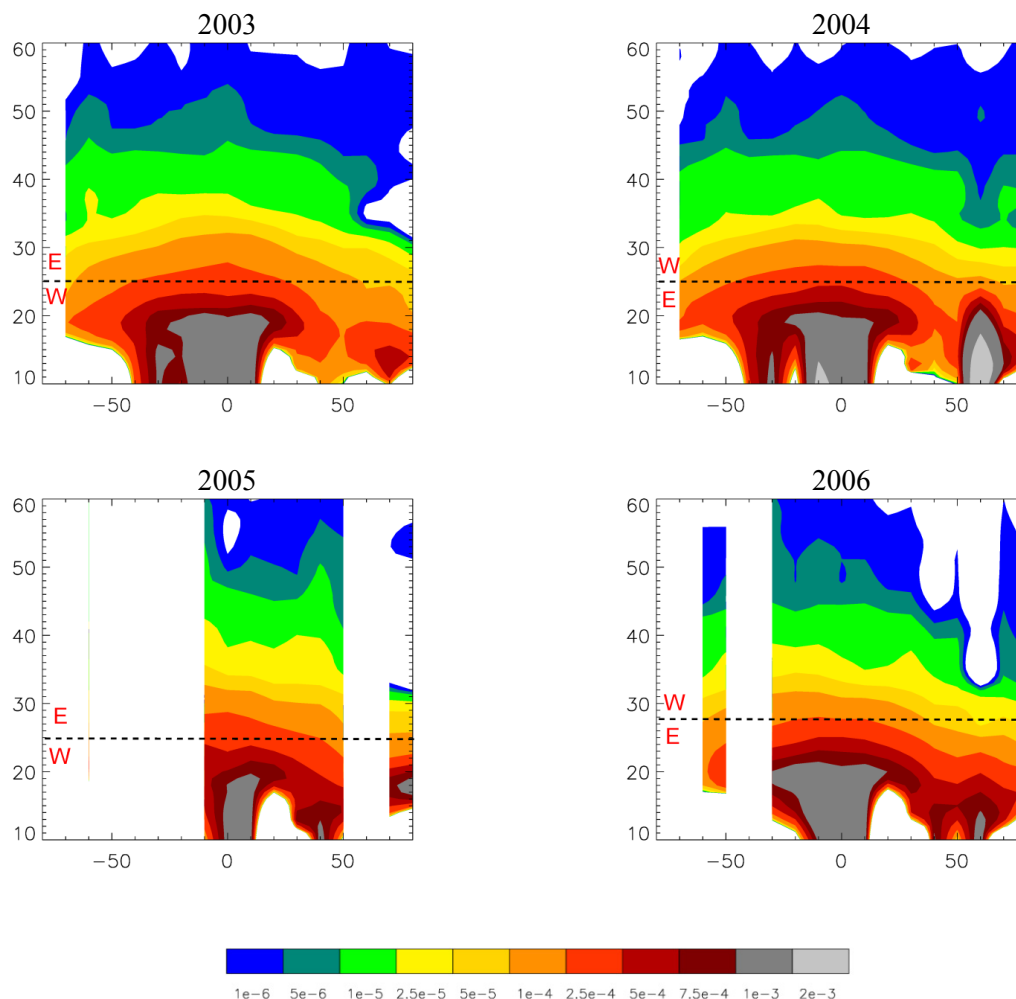


Figure 92. Extinctions moyennes à 500 nm ( $\text{km}^{-1}$ ) pour les mois de janvier des différentes années, périodes correspondantes aux phases est (à gauche) et ouest (à droite) de la QBO à 30 km. La transition de régime a lieu aux altitudes indiquées par la ligne noire en pointillés. Les lettres E et W indiquent phase *easterly* (est) et *westerly* (ouest).

La même tendance est perceptible dans la Figure 93, qui présente toutes les valeurs d'extinction à 500 nm entre  $10^\circ\text{N}$  et  $10^\circ\text{S}$  à 30 km, 28 km et 26 km d'altitude. Les niveaux d'extinction à 30 km augmentent progressivement de septembre 2002 à juin 2003, et à partir de septembre 2004 (phases est indiquées par les flèches) et sont en général plus faibles lors des phases ouest. L'année 2006 présente des valeurs d'extinction élevées.

À 26 km d'altitude, la Figure 93 montre une augmentation progressive et constante de l'extinction dans la période considérée.

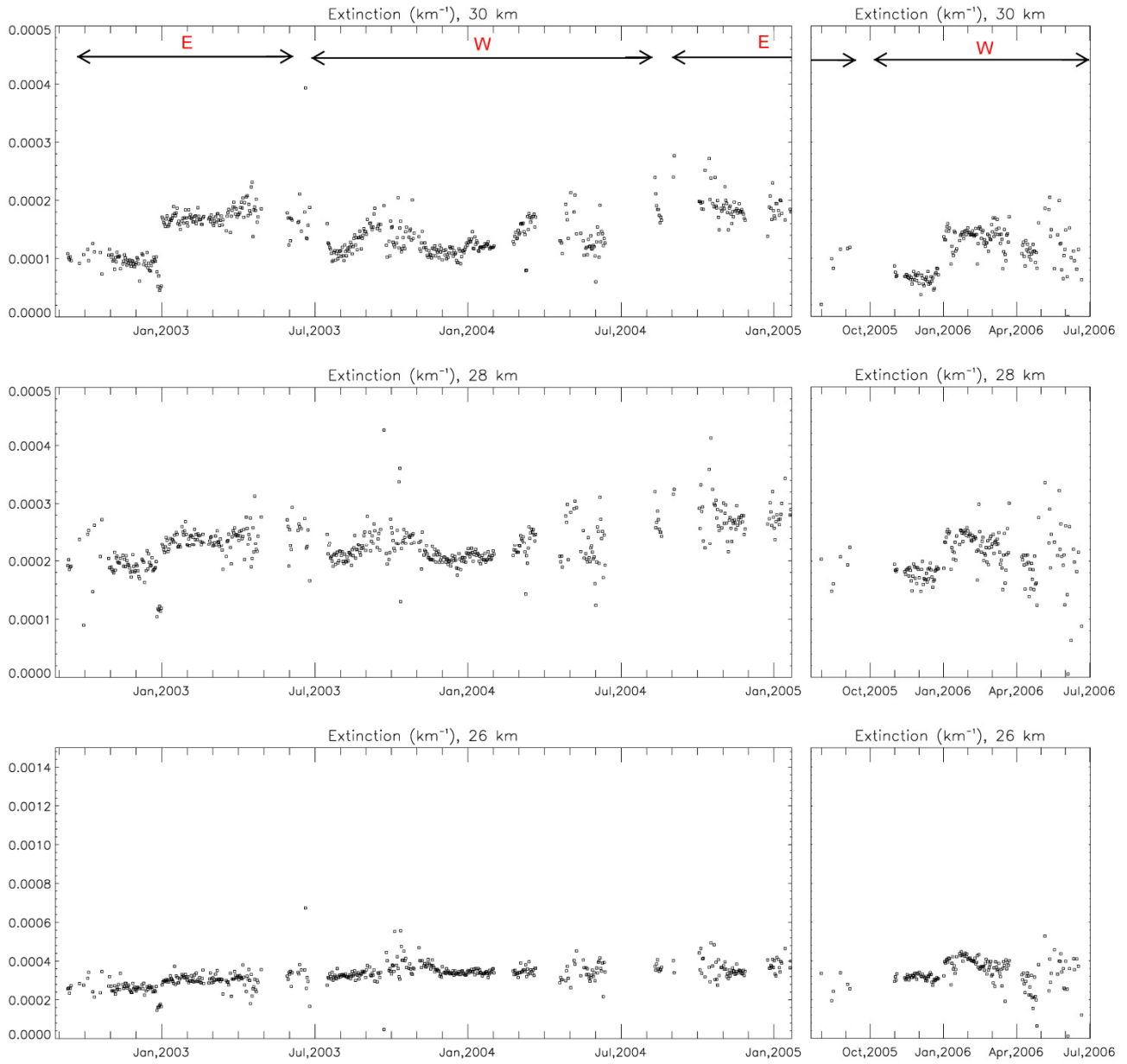


Figure 93. Variation temporelle des valeurs d'extinction à 500 nm à 30 km, 28 km et 26 km d'altitude. Les flèches montrent les différentes phases de la QBO à 30 km. Les lettres E et W indiquent respectivement phase est et ouest.

### 4.5.1 Hivers polaires

Les moyennes zonales donnent un aperçu de la distribution verticale de l'extinction aux différentes saisons. Quatre hivers arctiques et trois hivers antarctiques complets sont inclus dans la climatologie. Les hivers arctiques particuliers de 2003-2004 et 2005-2006 sont décrits dans la section 4.6.

La caractéristique générale la plus notable est le vidage du contenu d'aérosols dans la moyenne stratosphère, juste au-dessus de 30 km, altitudes auxquelles la limite de détection apparaît à ces périodes. La diminution des valeurs d'extinction se fait de manière progressive, et la stratosphère se maintient libre de particules durant 3 mois environ. À la fin de l'hiver se produit une forte récupération pour atteindre les niveaux typiques d'extinction. Ce phénomène a été décrit par Bingen et al. (2004b) à des altitudes inférieures: autour de 60° de latitude, le vortex polaire crée une barrière dynamique empêchant le transport des aérosols aux hautes latitudes, et provoquant la subsidence des aérosols juste au-dessus de la tropopause. L'accumulation des particules provoque une augmentation de leur concentration.

#### 4.5.1.1. Hivers arctiques 2002-2003, 2004-2005

Pendant l'hiver arctique de 2002-2003, les températures minimales atteintes mesurées par GOMOS étaient en dessous des valeurs de formation de nuages stratosphériques polaires de mi-novembre à mi-janvier (Tétard et al., 2009). C'est à partir du mois de novembre que l'on observe une diminution progressive des coefficients d'extinction au-dessus de 30 km d'altitude (Figure 73 pour 90°N-70°N), qui sont inférieurs à la limite de détection jusqu'au mois de mars.

Une situation similaire se produit pendant l'hiver arctique de 2004-2005, qui fut un record quant aux températures atteintes dans la basse stratosphère, les plus basses depuis 50 ans (Manney et al., 2008). Celles-ci permettent la formation de PSCs depuis le mois de novembre 2004 jusqu'à la fin du mois de février. Dans la Figure 70, les fortes valeurs d'extinction vers 20 km en décembre 2004 diminuent en altitude pendant le mois de janvier 2005.

#### 4.5.1.2. Hivers antarctiques

Les hivers antarctiques ont une couverture des mesures plus irrégulière. Cependant, les nuages stratosphériques polaires, plus fréquents et avec une durée de vie plus longue, apparaissent dans presque tous les profils d'hiver entre 50°S et 70°S.

Les valeurs d'extinction sont en accord avec les moyennes saisonnières d'après Vanhellemont et al. (2005b) et Dodion et al. (2008). On observe également une descente des nuages stratosphériques polaires en altitude, qui est plus évidente que celle observée aux latitudes boréales. Les auteurs estiment les vitesses de descente à 2,3 km/mois entre 50°S et 60°S, 1,9 km/mois entre 60°S et 70°S et 0,7 km/mois entre 70°N et 80°N pour les hivers de 2004 et 2005, ce qui est en accord avec les observations présentées ici (Figure 77). Les auteurs attribuent ce phénomène à la baisse des températures minimales dans la basse stratosphère; les vitesses de sédimentation sont considérées trop rapides pour en être la cause principale, et les descentes diabatiques des distributions de HNO<sub>3</sub> et H<sub>2</sub>O, trop faibles.

## 4.6 Événements particuliers

Lors de quelques événements décrits dans cette section, les cartes de  $\text{NO}_2$  montrent une forte corrélation avec les valeurs de l'extinction à 500 nm. Il est important de constater que l'algorithme d'inversion ne peut pas produire ces effets, étant donné que la méthode DOAS employée pour la recherche de  $\text{NO}_2$  est indépendante de la recherche du contenu en aérosols, la première travaillant en différentiel entre les extrema des raies spectrales, et la deuxième travaillant en absolu sur le niveau du résidu des transmissions.

### 4.6.1 Août-septembre 2003

Pendant le mois d'août 2003, aux latitudes entre  $90^\circ\text{N}$  et  $70^\circ\text{N}$ , une augmentation soudaine des coefficients d'extinction est visible dans la Figure 95. Cette augmentation est reproduite par le traitement avec l'algorithme officiel (Figure 47, page 91); les incertitudes de la méthode utilisée sont les plus uniformes verticalement et les plus faibles de l'ensemble de la période étudiée pour cette bande de latitudes, allant jusqu'à 25% (Figure 72, page 116).

À cette période, les valeurs d'extinction que l'on retrouve typiquement à 20, 30 et 40 km sont présentes à ces moments à 30, 40 et 50 km d'altitude. Le maximum de cette montée est atteint au début du mois de septembre, et ensuite une diminution progressive mène aux valeurs habituelles vers la fin du mois d'octobre. Les contours de concentration de  $\text{NO}_2$  tracés entre 25 et 60 km montrent la même augmentation; l'indice de couleur indique une forte diminution de l'extinction avec la longueur d'onde, comportement spectral typique de particules liquides mais qui aux hautes altitudes reflète la présence de très petites particules solides (section 4.4).

La raison de ces augmentations est incertaine. Cependant, la coïncidence avec les intenses feux de biomasse qui ont lieu aux hautes latitudes à ces périodes mène à penser que ces phénomènes sont liés. Les instruments TOMS, MODIS et SAGE III présentent des signaux correspondants à de fortes concentrations d'aérosols dans la basse stratosphère. À partir des données de SAGE III, Tétard (2008) conclut que les aérosols détectés ne sont pas de dimension supérieure à celle des aérosols de fond, ce qui est en accord avec les indices de couleur observés à cette période (en haut à gauche dans la Figure 95). Le fait que des feux soient à l'origine de ces augmentations expliquerait également les fortes concentrations de  $\text{NO}_2$  observées dans la basse stratosphère (en bas à droite dans la Figure 95), mais ne justifie pas l'ascension d'aérosols jusqu'à 50 km d'altitude observée entre  $50^\circ\text{N}$ - $70^\circ\text{N}$  et  $70^\circ\text{N}$ - $90^\circ\text{N}$  (Figure 73).

La Figure 94 présente les distributions des épaisseurs optiques, calculées à partir des valeurs d'extinction à 500 nm comprises entre 30 et 60 km d'altitude, pour différents jours à ces périodes. Peu de variabilité est observée vers  $70^\circ\text{N}$ , où les valeurs sont maximales depuis fin août jusqu'au début du mois d'octobre. Les feux du Canada en septembre 2003 ont lieu en Colombie Britannique entre  $50^\circ\text{N}$  et  $60^\circ\text{N}$ , et ceux en Russie orientale se trouvent autour du lac Baïkal à  $53^\circ\text{N}$ . Or, dans la Figure 94, la bande entre  $50^\circ\text{N}$  et  $60^\circ\text{N}$  présente de fortes valeurs, mais plus de variabilité du contenu d'aérosols.



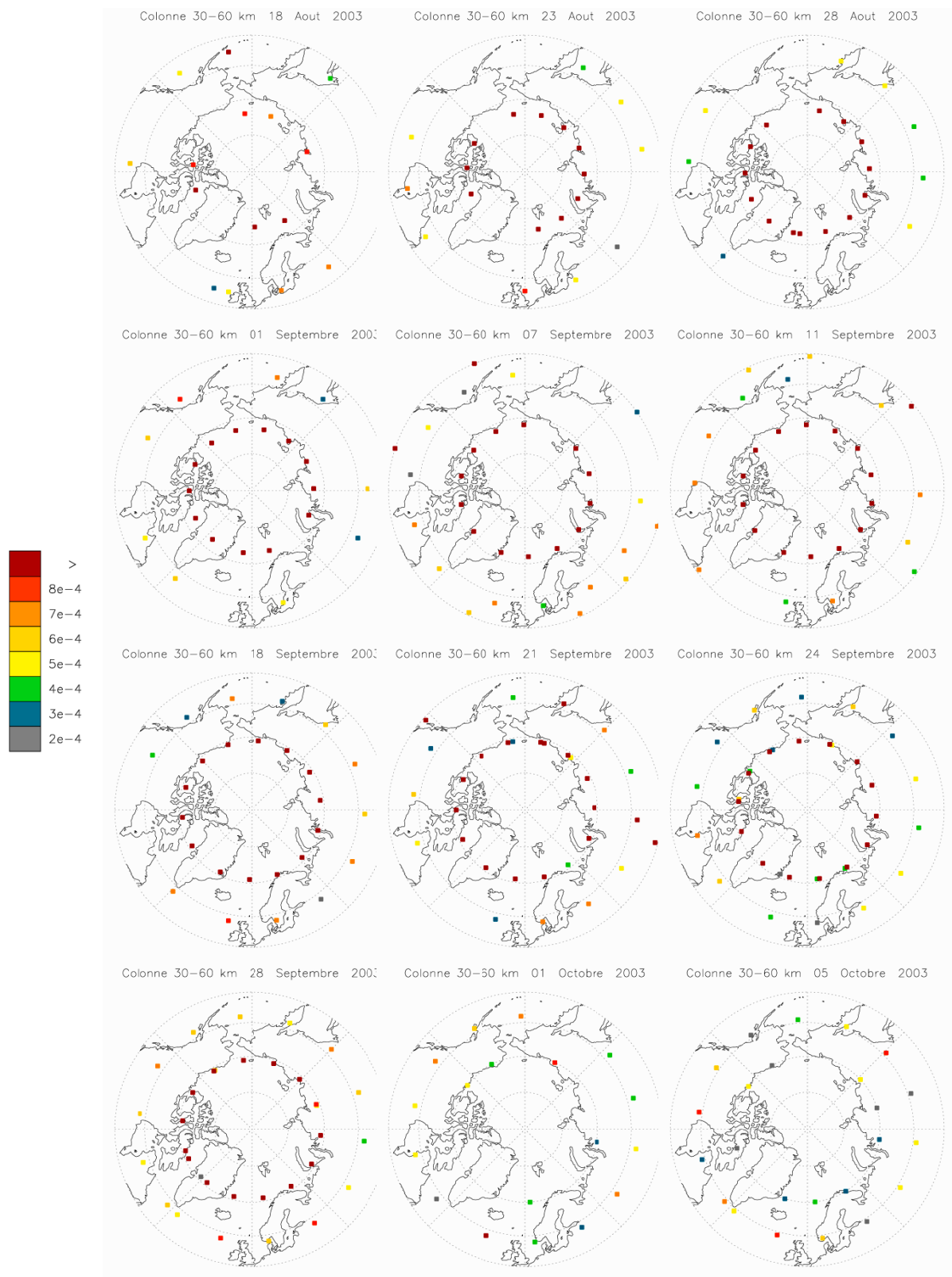


Figure 94. Cartes des épaisseurs optiques des aérosols à 500 nm, entre 30 et 60 km et entre 50°N et 70°N, pour différents jours avec une bonne répartition des mesures en août, septembre et octobre 2003

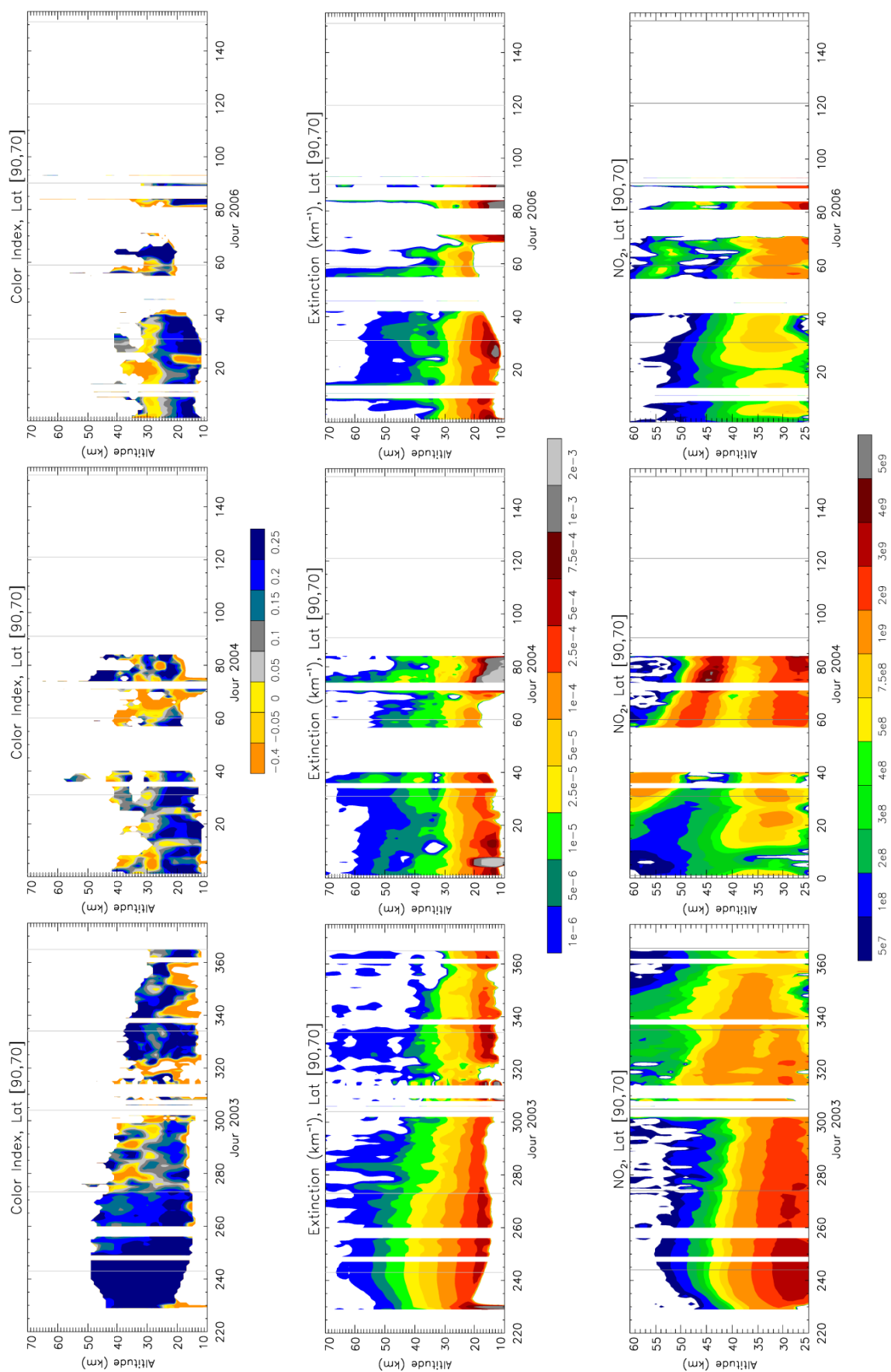


Figure 95. Indice de couleur, extinction à 500 nm et concentration de  $\text{NO}_2$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) depuis mi-août jusqu'à fin 2003 (gauche), de janvier à mai 2004 (milieu) et de janvier à mai 2006 (droite), entre  $90^\circ\text{N}$  et  $70^\circ\text{N}$ .

## 4.6.2 Hiver arctique 2003-2004

La période correspondant à l'hiver arctique 2003-2004 fut très inhabituelle (e.g. Manney et al., 2005), et les différents phénomènes, amplement décrits dans la bibliographie, semblent influencer le contenu en aérosols :

- Vers la fin du mois d'octobre et début novembre, un fort événement protonique solaire (SPE, *solar proton event*) correspondant à des éjections de masse coronale (CME, *coronal mass ejections*) a lieu (Seppälä et al., 2004). Les protons atteignant l'atmosphère dans les régions polaires produisent de fortes quantités de NO<sub>x</sub> (Randall et al., 2005, López-Puertas et al., 2006). En novembre, Hauchecorne et al. (2005, 2006) détectent un pic de NO<sub>2</sub> au-dessus de 38 km avec des rapports de volume jusqu'à 38 ppbv à 50 km.
- Pendant cet hiver, les températures sont aptes à la formation de nuages stratosphériques polaires depuis le mois de novembre. On observe à ces dates une diminution progressive des coefficients d'extinction des aérosols, comme celle qui caractérise tous les hivers polaires. Cette diminution mène à des valeurs d'extinction inférieures à la limite de détection au-dessus de 30 km à la fin de l'année (Figure 95). Puis, l'air extérieur au vortex vient se mélanger au faible contenu en aérosols après un réchauffement stratosphérique mineur au début du mois de décembre; un réchauffement majeur à la fin du mois de janvier provoque la rupture du vortex polaire (qui se reforme rapidement dans la haute stratosphère, mais demeure faible dans la moyenne et haute stratosphère), et le vidage au-dessus de 30 km décrit précédemment est interrompu; l'extinction augmente brutalement entre 30 et 40 km, et présente un indice de couleur négatif.
- Entre le 20 et le 21 janvier 2004, une forte descente mésosphérique, dont les effets sont perceptibles jusqu'en mars, a lieu pendant la récupération du vortex polaire. Un transport rapide de grandes quantités de NO<sub>x</sub> depuis la haute atmosphère a lieu (Hauchecorne et al. 2007). Les vitesses de descente aux altitudes inférieures diminuent de 600 m/jour vers la fin du mois de janvier, à 200 m/jour en mars; la même situation est présentée dans la Figure 95.
- Le maximum de concentration de NO<sub>2</sub> entre le jour 38 et le jour 80 est bien corrélé avec le maximum d'extinction; cependant, le lien entre ces paramètres n'est pas chimique, mais indicatif de la même provenance des masses d'air. Ce résultat paraît indiquer une descente d'aérosols mésosphériques; il pourrait donc s'agir d'une descente de particules de fumée météoritique, déjà détectées dans la mésosphère par SOFIE (Hervig et al., 2009), ou de formation d'aérosols dans la moyenne stratosphère, puis subsidence des particules.

Une situation similaire à celle qui se produit pour NO<sub>2</sub> lors des événements de l'automne en Arctique a lieu en juillet 2003 dans l'hémisphère austral (Figure A4 en annexe). Il est suggéré (Hauchecorne et al., 2005) qu'elle soit due à une descente mésosphérique dans le vortex polaire d'une masse riche en NO<sub>x</sub>, et une possible contribution des SPE durant fin mai 2003.

### 4.6.3 Hiver arctique 2005-2006

Les températures pendant l'hiver arctique 2005-2006 atteignent les valeurs minimales nécessaires à la formation de PSCs seulement pendant quelques jours au mois de janvier. Cependant, cet hiver (Figure 95) présente une similitude avec l'hiver de 2003-2004, car les réchauffements stratosphériques soudains observés aux mois de janvier 2004 et 2006 sont considérés comme les plus forts depuis que les observations existent (Manney et al., 2008).

Pendant l'hiver 2005-2006, le réchauffement majeur au milieu de l'hiver provoque le changement de la direction des vents à partir du 23 janvier 2006 (Hoffmann et al., 2007). Les faibles valeurs d'extinction observées pendant le mois de décembre 2005 sont interrompues par une forte augmentation en janvier, qui pourrait être expliquée par la rupture du vortex et présence d'air extérieur plus riche en aérosols.

Une descente mésosphérique pendant le 7-8 février 2006 suit également une période de récupération du vortex (Orsolini et al., 2010). En-dessous de 60 km, les effets de la descente mésosphérique sont mis en évidence par l'augmentation de  $\text{NO}_2$  jusqu'à atteindre des valeurs de concentration de  $5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ , valeurs élevées mais inférieures à celles qui résultent de la descente de 2004 d'environ un ordre de grandeur. Pas d'augmentation de l'extinction n'est observée cette fois, mais il est possible qu'elle ait lieu et soit trop faible pour pouvoir être détectée.

---

# Conclusions générales et perspectives

## Conclusions générales

Ce travail de thèse a été consacré au traitement et à l'analyse des données de niveau 1b de l'instrument GOMOS, dans le but d'étudier les propriétés des aérosols présents dans la stratosphère. Pour ce faire, un algorithme initialement conçu pour l'inversion de données d'instruments sous ballons stratosphériques a été utilisé, et une méthode d'analyse mise au point, en tenant compte du grand nombre de mesures et de l'irrégularité des spectres de transmission qui résultent de l'utilisation de sources lumineuses de caractéristiques variées. L'évaluation de cette méthode a été faite par comparaison de l'extinction à 500 nm issue du traitement à celle des produits officiels de niveau 2; les valeurs de l'extinction à 521 nm mesurées par l'instrument SAGE III -récupérées à partir de la base de données PROMOTE- ont également été comparées aux résultats de chaque méthode pour l'année 2004.

De façon qualitative, les données officielles sont globalement en bon accord avec les résultats LPC2E, et ces deux traitements permettent parfois le suivi des mêmes variations; cependant, le calcul des différences relatives entre les sets de données laisse apparaître des différences significatives: dans la basse stratosphère, les produits officiels fournissent des valeurs d'extinction supérieures aux produits LPC2E dans tous les cas, et sont en meilleur accord avec les données de SAGE III à 521 nm. Ceci témoigne de l'habileté de l'algorithme officiel à reproduire l'extinction du signal causée par la présence d'aérosols dans la basse stratosphère. Cependant, la tendance dans la moyenne et haute stratosphère est inversée; l'extinction calculée à partir de l'algorithme du LPC2E est supérieure à celle calculée par l'algorithme officiel, pour lequel la limite de détection est atteinte typiquement entre 30 km et 40 km. À ces altitudes, les différences relatives sont étonnamment faibles lorsque sont comparées les données GOMOS-LPC2E à 500 nm et les données SAGE III à 521 nm.

La limite de détection de la méthode décrite dans le Chapitre 3 est une valeur d'extinction d'environ  $1 \cdot 10^{-6} \text{ km}^{-1}$ , atteinte en général vers 50 km d'altitude. Ceci a motivé l'élaboration d'une nouvelle climatologie des données GOMOS, avec un spécial intérêt porté à la moyenne et haute stratosphère, zone jusqu'à présent inexplorée en ce qui concerne une étude générale des aérosols par cet instrument, d'après les travaux parus à ce jour.

La période étudiée comprend la fin du mois d'août 2002 jusqu'au début du mois de juillet 2006, avec une distribution spatio-temporelle très irrégulière des mesures. Plusieurs critères très sélectifs ont été nécessaires pour le tri des données, et la qualité des résultats a été privilégiée face à une couverture géographique et temporelle complète. Ainsi, typiquement autour de 20% des produits disponibles font partie des résultats finaux; une diminution du nombre total de ces produits, ainsi que du pourcentage de profils d'extinction satisfaisant les différents critères de sélection sont la preuve d'une dégradation progressive de l'instrument. Une anomalie dans les données GOMOS (ou dans la méthode d'analyse) conduit à une incertitude systématique de la concentration d'ozone dont la cause n'a pu être déterminée; elle se produit entre 30 km et 40 km d'altitude, à différentes périodes uniquement pendant l'année 2004.

L'analyse des résultats révèle la présence d'aérosols à toutes les latitudes et pour toutes les périodes (excepté en hiver polaire) jusqu'à 45 kilomètres d'altitude. La valeur exacte des coefficients d'extinction pourrait être faussée par une correction inexacte de l'effet de dilution, et pour cette raison seulement les variations relatives sont étudiées. Cependant, le facteur de dilution ne peut faire apparaître des variations si des particules ne sont pas présentes; la cohérence de la variation de l'indice de couleur est aussi indicatrice de la détection réelle d'aérosols. L'analyse de ce paramètre permet de distinguer les grandes ou moyennes particules météoritiques de celles qui présentent une faible dépendance spectrale telles que les suies, et de celles qui sont fortement dépendantes de la longueur d'onde, comme les aérosols liquides sulfatés.

Des couches d'aérosols dont la dépendance spectrale est neutre apparaissent principalement aux latitudes intertropicales entre 30 km et 40 km, et peuvent persister pendant plusieurs mois, alors que les valeurs de l'indice de couleur interprétées comme la signature de particules météoritiques sont plus fréquemment rencontrées aux hautes latitudes, et sont distribuées de façon assez aléatoire, avec des apparitions et disparitions rapides, sans faire apparaître de processus de sédimentation bien définis dans la plupart des cas.

La variabilité temporelle des aérosols est étudiée à partir de l'extinction à 500 nm. Dans la basse stratosphère (entre 20 km et 25 km), une augmentation progressive est observée depuis 2002; en moyenne, pour les années 2002 à 2004 elle est de 4% environ aux latitudes tropicales. Des éruptions volcaniques à ces périodes (Ruang en septembre 2002 et Reventador en novembre 2002) pourraient être à l'origine de ces augmentations.

Les valeurs d'extinction de l'année 2005 sont supérieures aux moyennes calculées pour les autres années, mais peu représentatives de l'ensemble de la période car une panne instrumentale est à l'origine de l'absence complète de données entre février et juin. Cependant, l'éruption du volcan Manam en janvier pourrait justifier ces valeurs élevées.

Le soufre nécessaire à la formation d'aérosols de fond peut également provenir de l'injection tropicale d'air troposphérique riche en OCS, SO<sub>2</sub> et particules de sulfate. La photodissociation et l'oxydation des gaz de soufre ont lieu aux tropiques, et les aérosols formés sont transportés vers les pôles, laissant un maximum de concentration de particules quasi-permanent dans la zone tropicale autour de 20 km d'altitude.

Les moyennes zonales de l'extinction ont permis d'évaluer l'effet notable de l'oscillation quasi-biennale, et d'étudier certaines variations saisonnières ou géographiques, comme celle qui est observée pendant tous les hivers polaires dans les deux hémisphères. Il s'agit certainement de l'effet de la barrière dynamique du vortex: comme résultat de la subsidence qui démarre au début de l'hiver, les valeurs d'extinction diminuent de façon progressive et deviennent très faibles (inférieures à la limite de détection) au-dessus de 30 km d'altitude, avec un fort gradient horizontal. Cette situation perdure jusqu'au printemps, puis une récupération rapide vers les valeurs typiques a lieu à la fin de l'hiver. Ce processus est interrompu lorsque des réchauffements stratosphériques majeurs ont lieu.

Un lien entre les valeurs de concentration du dioxyde d'azote et les valeurs d'extinction à 500 nm a été présenté pour certains cas particuliers. Des épisodes de fortes concentrations de NO<sub>2</sub> aux latitudes arctiques sont corrélés avec un important contenu en aérosols. Il semble fortement probable que dans le cas de la descente mésosphérique qui a lieu à partir de janvier 2004, les aérosols suivent la même trajectoire décrite par le NO<sub>2</sub> formé à l'automne 2003. Dans le cas de la forte augmentation observée à la fin de l'été 2003 en Arctique, les intenses feux à cette période en Sibérie et au Canada pourraient expliquer l'augmentation de la concentration de NO<sub>2</sub> dans la basse stratosphère, et l'augmentation des valeurs d'extinction dans la basse stratosphère entre 50°N et 70°N. Cependant, aucun processus connu ne justifie que les aérosols soient hissés vers la haute stratosphère, et que les plus fortes augmentations des valeurs d'extinction aient lieu dans la moyenne et haute stratosphère, entre 70°N et 90°N, à des latitudes bien plus au nord que celles où ont lieu les incendies.

## Perspectives

Les principales différences dans le traitement avec l'algorithme du LPC2E par rapport à l'algorithme officiel sont, d'une part, la restriction du domaine spectral au visible, permettant l'utilisation d'une zone du spectre de transmission où le rapport signal sur bruit est uniforme. D'autre part, la correction de l'effet de scintillation se fait par une méthode de lissage, au lieu d'utiliser le signal des photomètres. Enfin, un polynôme de quatrième degré a été choisi pour l'ajustement du spectre résiduel, car celui-ci est probablement plus apte qu'un polynôme de deuxième degré à reproduire les variations de l'extinction qui ont lieu aux altitudes supérieures. Il serait envisageable que des modifications concernant ces trois points soient apportées à l'algorithme officiel actuel pour le traitement des données GOMOS depuis 2006 à nos jours.

D'autre part, depuis l'année 2005 le nombre de profils mesurés par GOMOS décline de façon progressive; malgré la prolongation de la mission ENVISAT jusqu'en 2013, GOMOS est aujourd'hui en fin de vie, et la possibilité d'effectuer un suivi continu des aérosols est de plus en plus faible. Cependant, les mesures à l'échelle globale qui ont été effectuées par l'instrument dans une période relativement longue permettront désormais de replacer dans un contexte étudié les résultats futurs obtenus par différentes stratégies complémentaires. Courant 2011, des campagnes de mesures sous ballons stratosphériques devraient être effectuées avec des versions modifiées du compteur de particules STAC, dans le but de déterminer la présence de champs électriques dans les particules stratosphériques, ce qui pourrait expliquer un comportement non régi par la circulation générale. Une nouvelle génération de petits compteurs d'aérosols capables d'être installés sous toutes les nacelles de ballons stratosphériques (et même sous ballons météorologiques) devrait ensuite être opérationnelle à partir de fin 2011, avec une technique d'observation permettant d'accéder à la fois à la concentration et à la nature des aérosols.



---

## Annexe



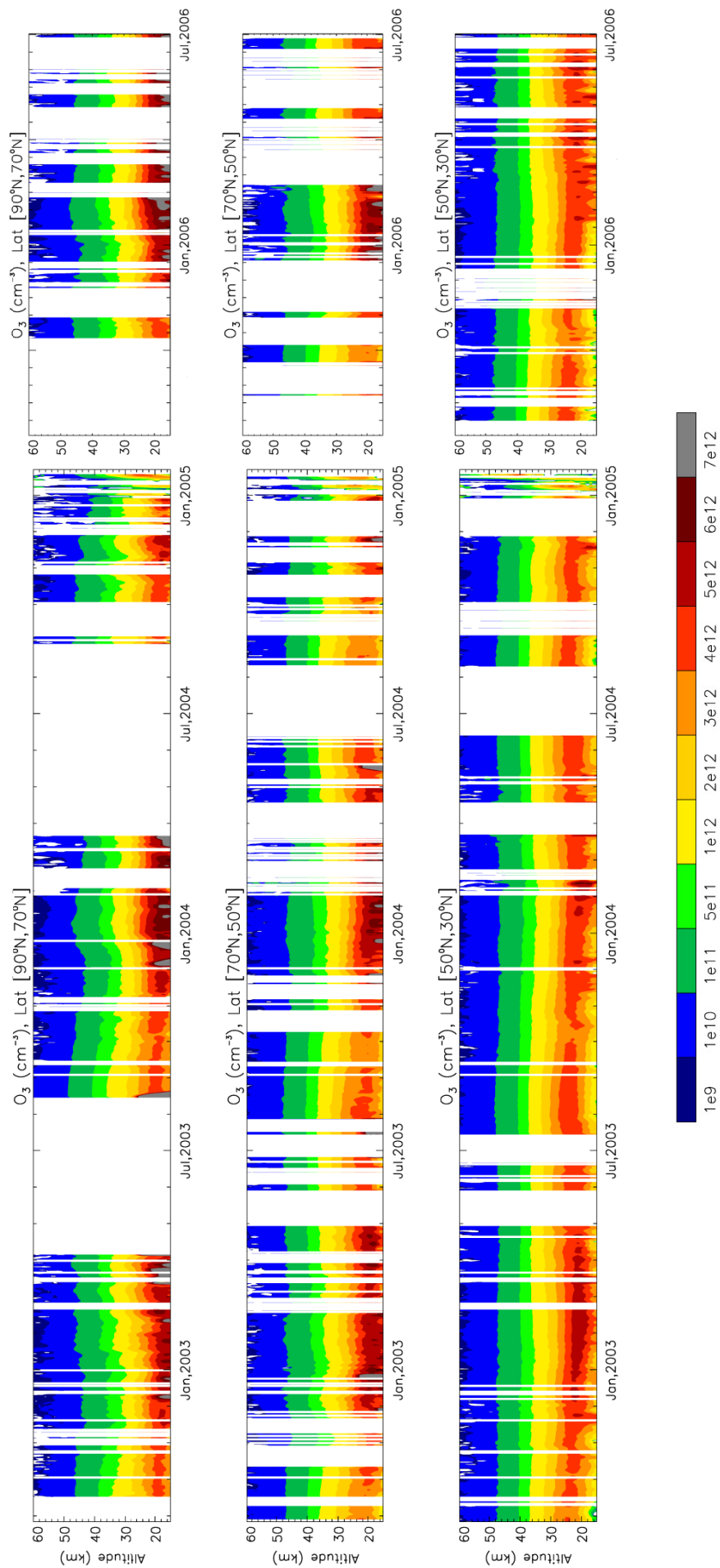


Figure A1. Variation temporelle de la concentration d’ozone ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère nord; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

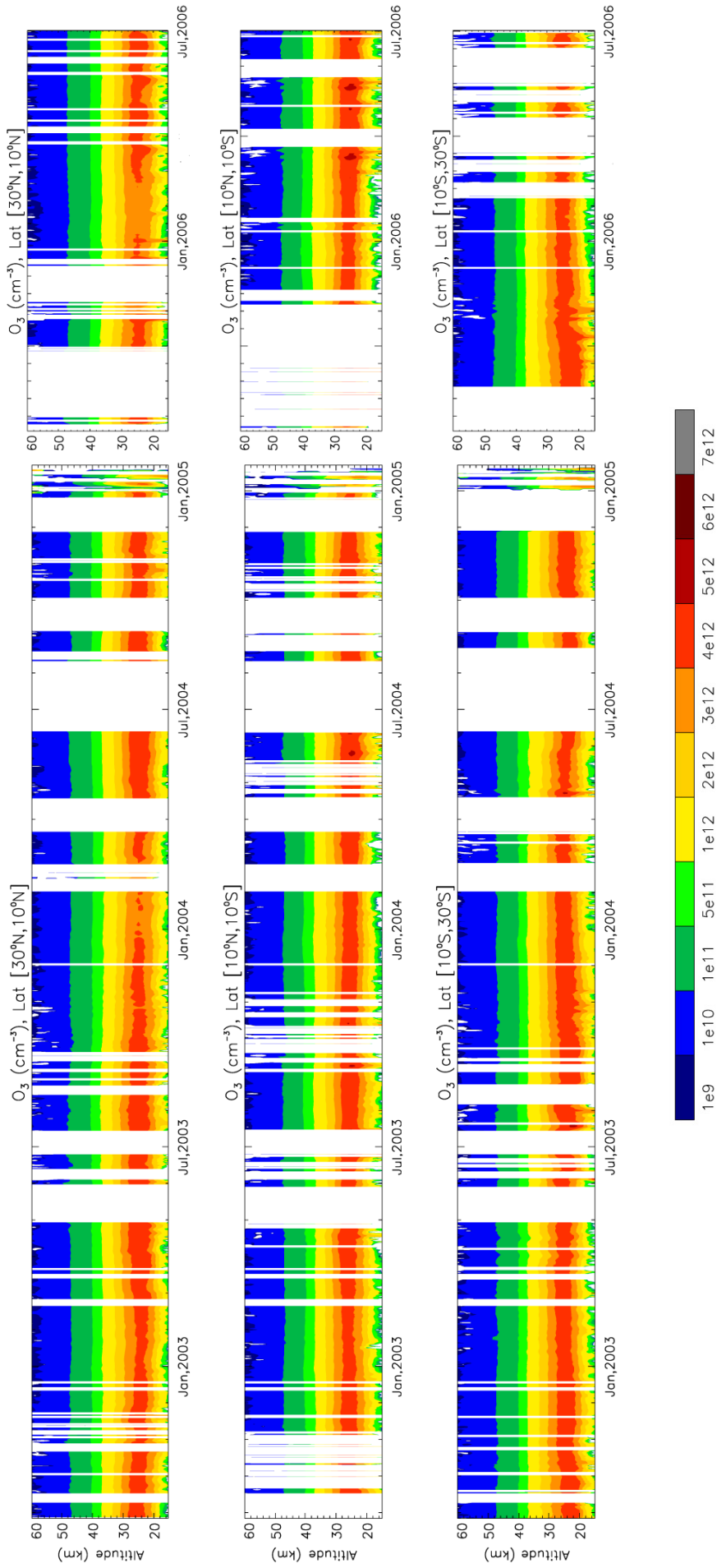


Figure A2. Variation temporelle de la concentration d'ozone ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

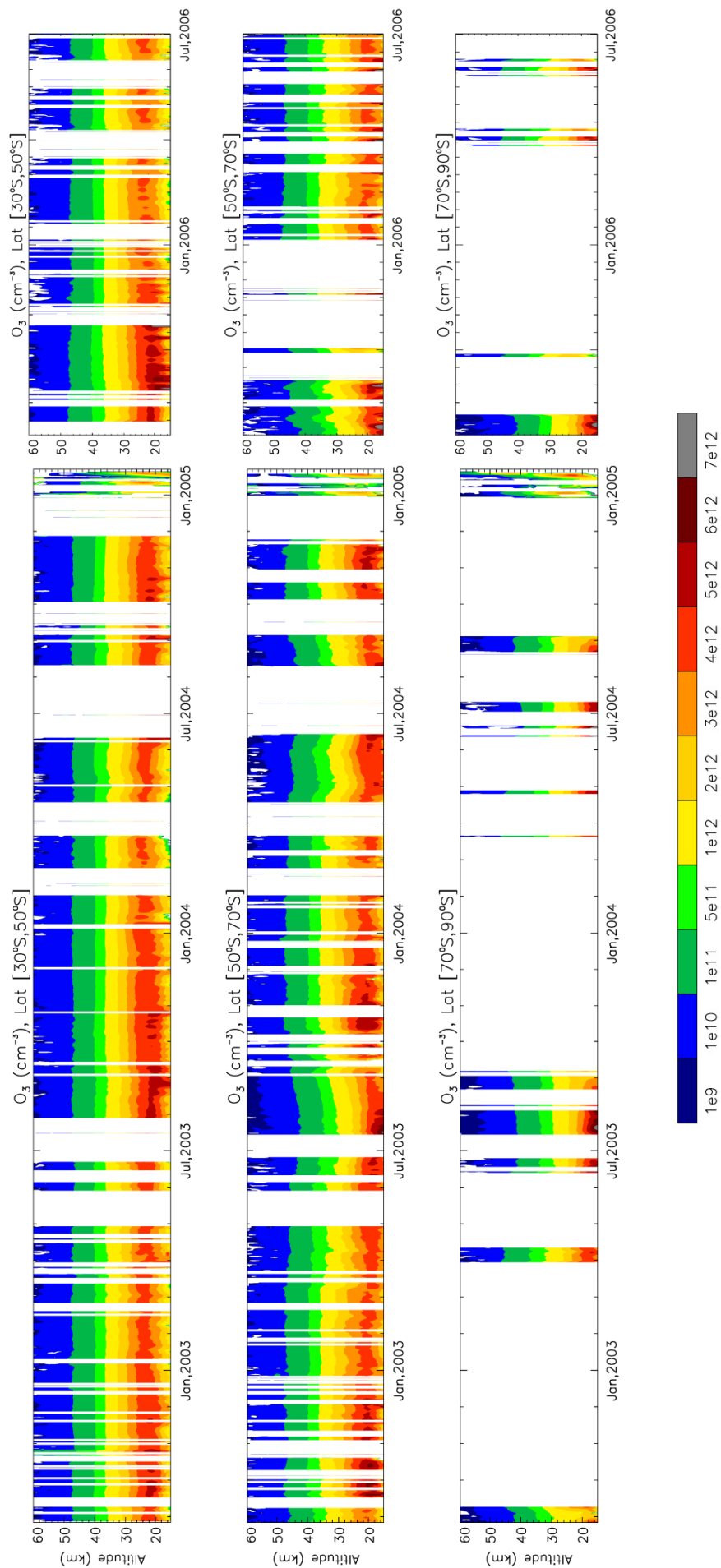


Figure A3. Variation temporelle de la concentration d’ozone ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère sud; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

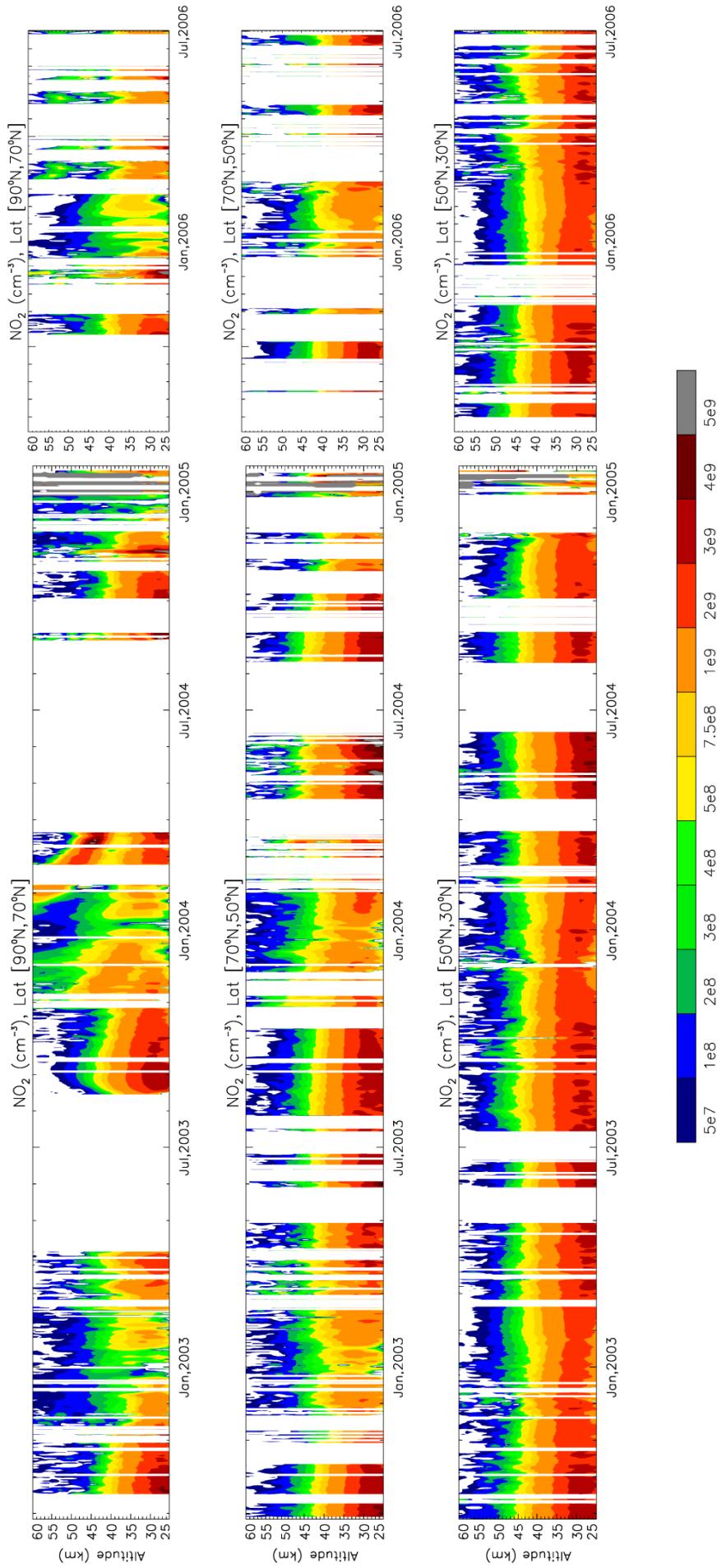


Figure A4. Variation temporelle de la concentration de  $\text{NO}_2$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l'hémisphère nord; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

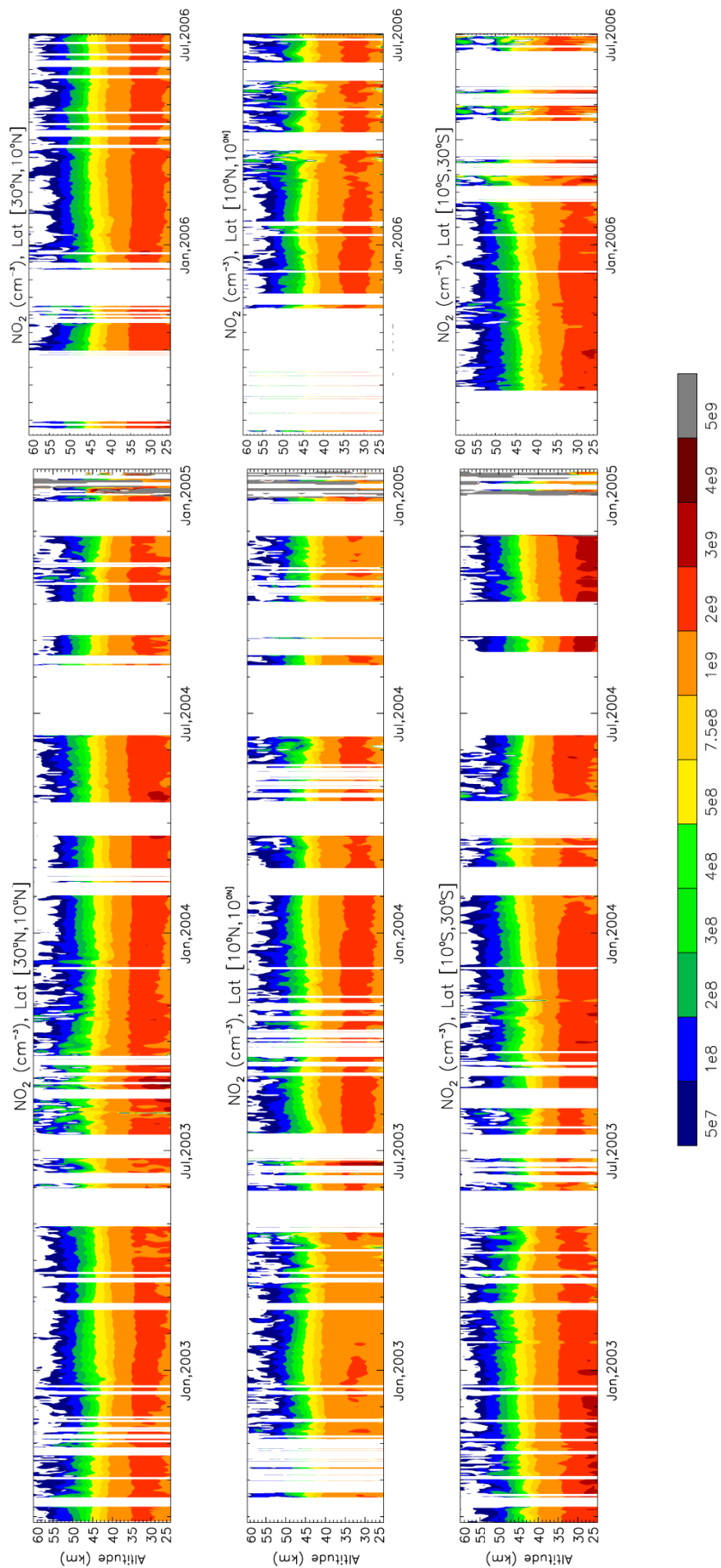


Figure A5. Variation temporelle de la concentration de NO<sub>2</sub> (cm<sup>-3</sup>) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

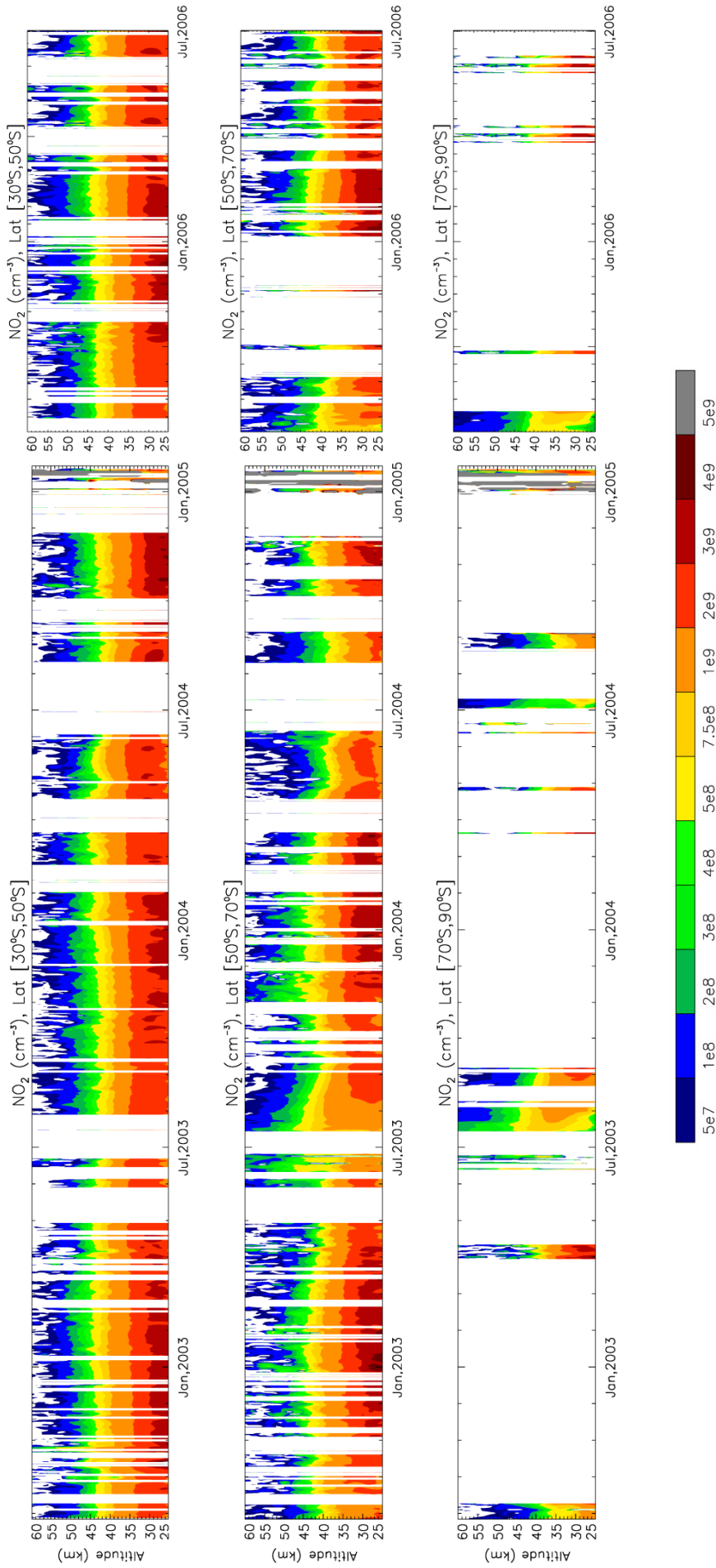


Figure A6. Variation temporelle de la concentration de  $\text{NO}_2$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l'hémisphère sud; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.



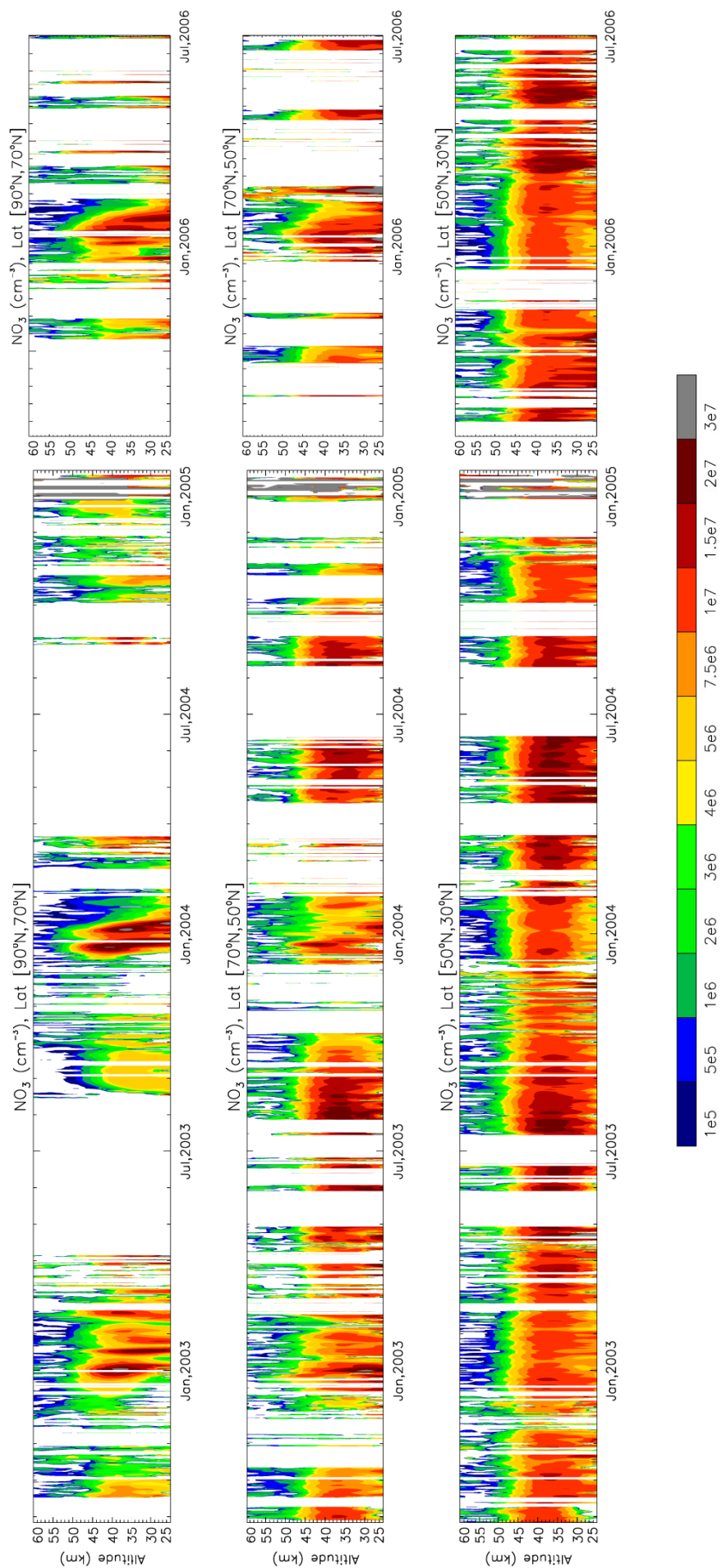


Figure A7. Variation temporelle de la concentration de  $\text{NO}_3$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l'hémisphère nord; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

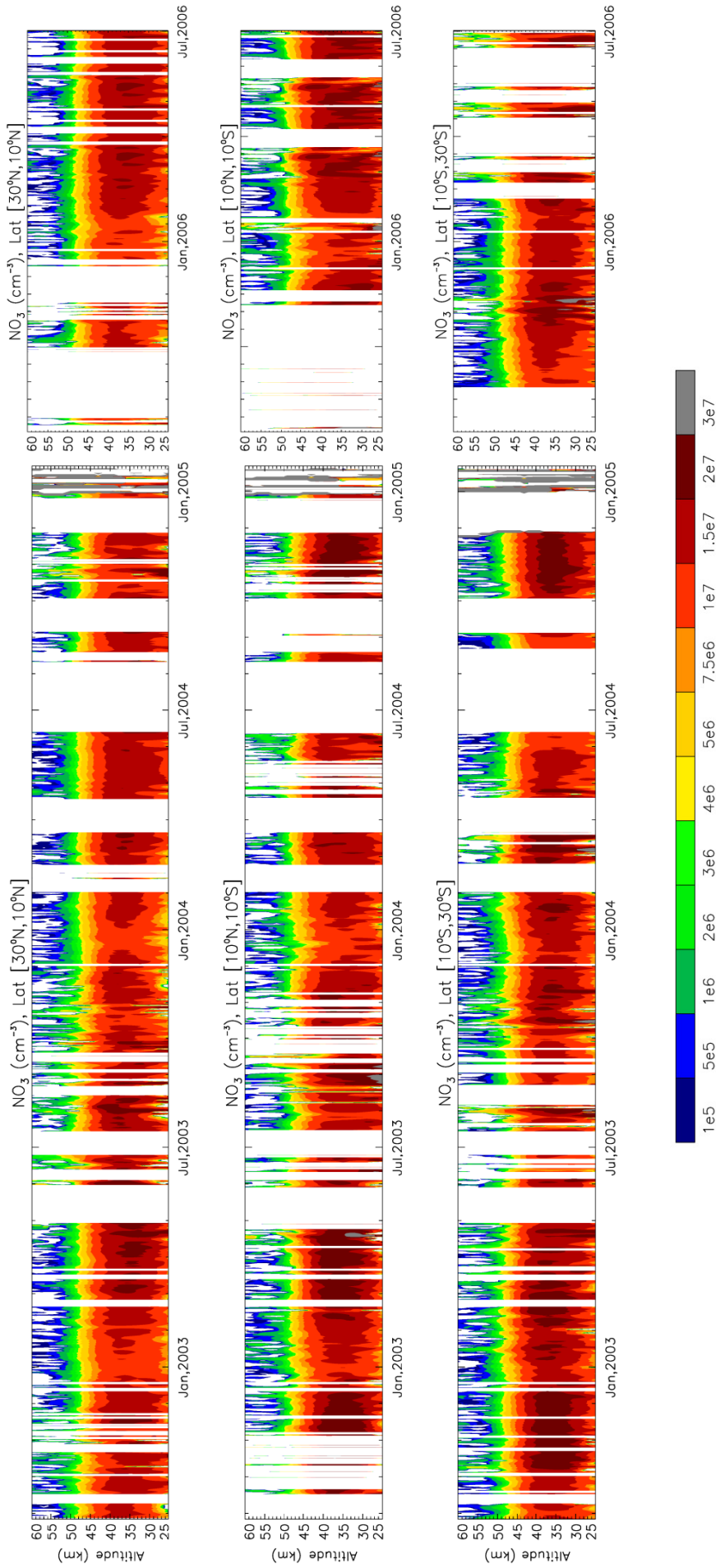


Figure A8. Variation temporelle de la concentration de  $\text{NO}_3$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.

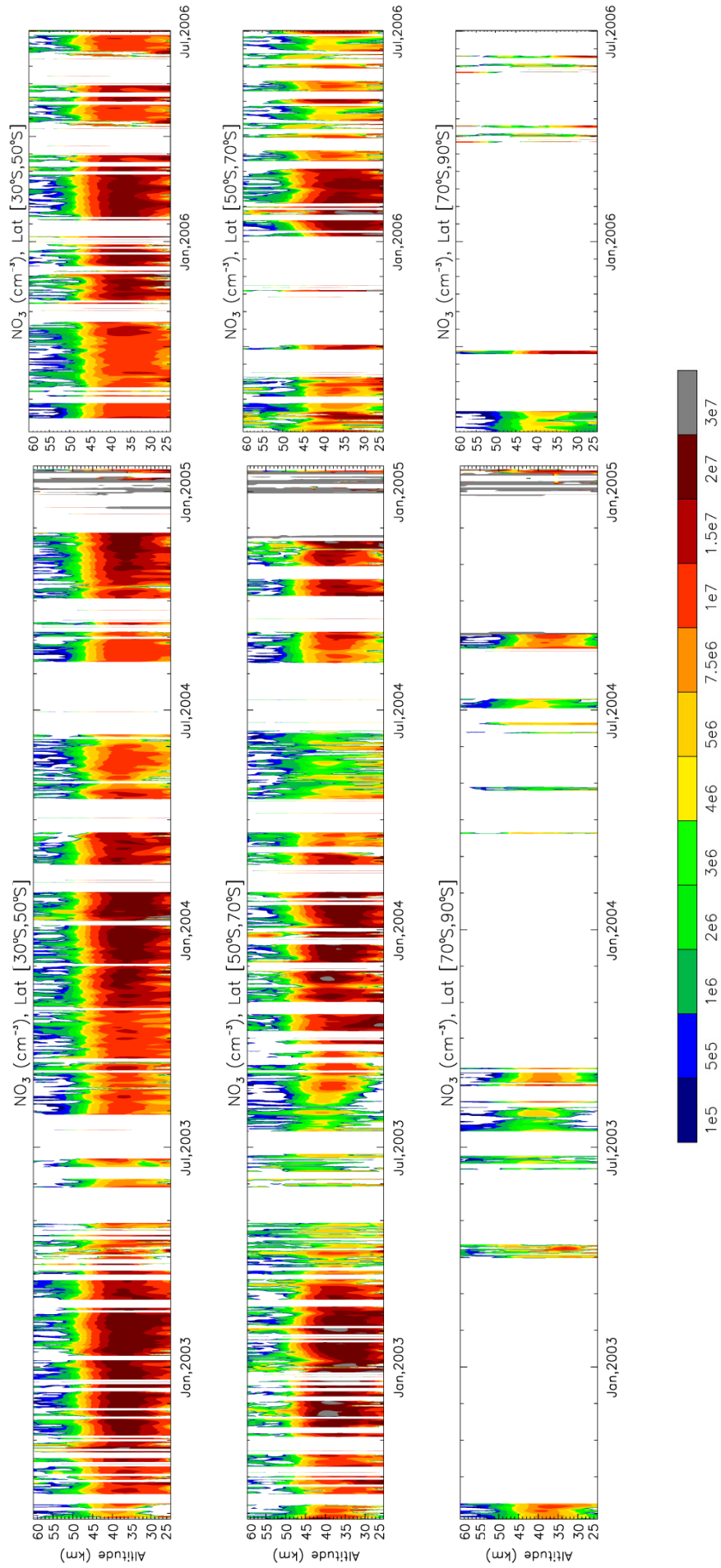


Figure A9. Variation temporelle de la concentration de  $\text{NO}_3$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) entre août 2002 et janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l'hémisphère sud; valeurs moyennes journalières, avec une moyenne glissante sur 3 jours.



---

# Liste des Tableaux

1-1. Constituants majeurs de l'atmosphère en dessous de 100 km.....	20
1-2. Caractéristiques des principaux instruments satellitaires d'occultation solaire.....	36
1-3. Éruptions volcaniques importantes depuis 1979.....	40
2-1. Résumé des paramètres spectraux de GOMOS.....	52
3-1. Exemple d'équivalence élévation-altitude pour une occultation en mars 2004....	78
3-2. Altitudes et longueurs d'onde auxquelles est calculé l'écart type.....	82
3-3. Périodes en 2004 qui présentent une anomalie dans les valeurs d'extinction.....	83
4-1. Nombre total de profils traités par mois, et pourcentage de profils sélectionnés à chaque étape du traitement en 2002.....	104
4-2. Idem Tableau 4-1 pour l'année 2003.....	105
4-3. Idem tableaux précédents pour l'année 2004.....	105
4-4. Idem tableaux précédents pour l'année 2005.....	106
4-5. Idem tableaux précédents pour l'année 2006.....	106
4-6. Valeurs moyennes annuelles des coefficients d'extinction de 2002 à 2006.....	133
4-7. Éruptions volcaniques mineures ayant eu lieu dans la période étudiée.....	136



---

# Liste des Figures

1. Composantes du forçage radiatif .....	14
2. Schéma général du bilan radiatif terrestre.....	18
3. Profil de température montrant la structure en couches de l'atmosphère.....	19
4. Aspects dynamiques de l'échange troposphère-stratosphère et de la circulation stratosphérique.....	22
5. Oscillation quasi biennale de 1993 à 2008.....	24
6. Évolution des particules depuis la nucléation jusqu'à la formation de noyaux de condensation.....	29
7. Différents modes de distribution en taille d'une population de particules.....	30
8. Schéma du principe d'un compteur optique.....	33
9. Stations du réseau international NDACC.....	34
10. Épaisseur optique mesurée par SAGE II après l'éruption de Mt Pinatubo.....	41
11. Logarithme de la concentration, rayon moyen et largeur de la distribution log-normale des aérosols en septembre 1993 d'après SAGE II.....	42
12. Logarithme de la concentration en aérosols en juin 1997 et juin 1998 d'après SAGE II.....	43
13. Évolution temporelle de la concentration de particules à 17,5 km d'altitude, de novembre 1993 à mars 2002.....	43

14. Image de microscopie électronique montrant la morphologie complexe des agrégats de suies collectés dans la stratosphère.....	45
15. Cycle de vie des aérosols stratosphériques.....	49
16. Répartition verticale des différents types d'aérosols stratosphériques proposée par Renard et al. (2008b).....	49
17. Maquette de la station ENVISAT au Living Planet Symposium en Norvège, juillet 2010.....	51
18. Vue d'artiste de l'instruments GOMOS et de ses composants.....	52
19. Schéma de l'occultation stellaire effectuée par GOMOS.....	56
20. Intensité du flux de différentes étoiles en fonction de la longueur d'onde.....	57
21. Couverture latitudinale des mesures nocturnes de GOMOS en 2003.....	58
22. Variation de l'élévation de la ligne de visée en fonction du temps de l'occultation causée par la réfraction atmosphérique.....	60
23. Logarithme des valeurs médianes de l'extinction à 500 nm pour différentes périodes en 2003.....	62
24. Valeurs médianes de l'extinction à 500 nm pour différentes périodes en 2004 et en 2005.....	62
25. Valeurs médianes annuelles de l'extinction à 500 nm de 2002 à 2008.....	63
26. Exemple de transmission atmosphérique corrigée de la scintillation.....	67
27. Épaisseur optique totale pour deux spectres enregistrés le 11 mars 2004.....	69
28. Épaisseur optique de la diffusion Rayleigh.....	69
29. Ajustement par la méthode semi-DOAS des sections efficaces de l'ozone.....	72
30. Profils de quantités intégrées de l'ozone.....	72
31. Ajustement par la méthode DOAS des sections efficaces différentielles du NO <sub>2</sub> ...	73
32. Profil des quantités intégrées de NO <sub>2</sub> .....	73
33. Ajustement par la méthode semi-DOAS des sections efficaces du NO <sub>3</sub> .....	74
34. Profils des quantités intégrées de NO <sub>3</sub> .....	74
35. Exemple de résidu spectral attribué à la contribution des aérosols.....	76
36. Résultat de l'inversion spatiale des quantités intégrées d'ozone.....	78
37. Résultat de l'inversion spatiale des quantités intégrées de NO <sub>2</sub> et NO <sub>3</sub> .....	79



38. Profil vertical d'extinction d'aérosols, montrant la dépendance spectrale.....	80
39. Profils individuels de bonne qualité obtenus après analyse avec l'algorithme du LPC2E lors d'occultations d'étoiles de faible brillance.....	81
40. Variation temporelle de l'extinction à 500 nm entre 30°N et 10°N en 2004.....	83
41. Exemple de profils verticaux d'ozone, et incertitude de l'ajustement pour le 20 février 2004, entre 0 et 15°N.....	84
42. Inversion spectrale de l'ozone où l'ajustement mathématique des sections efficaces ne reproduit pas le signal mesuré.....	84
43. Schéma récapitulatif des principales différences entre l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel.....	85
44. Profils individuels d'extinction d'orbites successives issus de l'algorithme du LPC2E et de l'algorithme officiel datant du 1 <sup>er</sup> janvier 2004.....	87
45. Profils d'extinction du 1 <sup>er</sup> janvier 2004 à 8°S, étoile de magnitude 0,77.....	88
46. Profils d'extinction du 1 <sup>er</sup> janvier 2004, à 20°N, étoile de magnitude 1,86.....	89
47. Extinction à 500 nm entre 80°N et 70°N en 2003, d'après l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel, et différence relative en %.....	91
48. Extinction à 500 nm entre 60°S et 70°S en 2003, d'après l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel, et différence relative en %.....	91
49. Extinction à 500 nm entre 0 et 10°N en 2003, d'après l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel, et différence relative en %.....	92
50. Extinction à 500 nm entre 30°S et 40°S en 2003, d'après l'algorithme du LPC2E et l'algorithme officiel, et différence relative en %.....	92
51. Valeurs moyennes mensuelles d'extinction par GOMOS à 500 nm, et SAGE III à 521 nm, entre 80°N et 70°N pour la période allant d'août 2002 à juillet 2006.....	93
52. Idem Figure 51 entre 60°N et 70°N.....	94
53. Idem figures précédentes entre 50°N et 60°N.....	94
54. Idem figures précédentes entre 40°N et 50°N.....	95
55. Idem figures précédentes entre 30°S et 40°S.....	95
56. Idem figures précédentes entre 40°S et 50°S.....	96
57. Idem figures précédentes entre 50°S et 60°S.....	96
58. Moyenne et écart type du % de la différence relative entre les valeurs mensuelles d'extinction GOMOS à 500 nm par l'algorithme du LPC2E, et les valeurs d'extinction à 521 nm de SAGE III.....	98

59. Moyenne et écart type du % de la différence relative entre les valeurs mensuelles d'extinction GOMOS à 500 nm par l'algorithme officiel, et les valeurs d'extinction à 521 nm de SAGE III.....	99
60. Moyenne et écart type du % de la différence relative entre les valeurs mensuelles d'extinction GOMOS à 500 nm par l'algorithme du LPC2E, et les valeurs d'extinction par l'algorithme officiel.....	100
61. Nombre total de profils d'extinction à chaque étape du traitement.....	107
62. Variation temporelle et zonale du nombre total de profils d'extinction inclus dans la climatologie, d'août 2002 à janvier 2005.....	108
63. Variation temporelle et zonale du nombre total de profils d'extinction inclus dans la climatologie, de juillet 2005 à juillet 2006.....	108
64. Exemple de profils individuels d'extinction montrant la variabilité de la couche de Junge à différentes dates.....	109
65. Exemples de profils individuels d'extinction montrant de fortes valeurs dans la basse stratosphère.....	110
66. Profil individuel d'extinction montrant le comportement spectral d'un cirrus.....	110
67. Profils individuels d'extinction montrant la variabilité du contenu en aérosols en hiver polaire antarctique.....	111
68. Profils individuels d'extinction montrant la signature de nuages stratosphériques polaires arctiques.....	111
69. Série de profils d'extinction du 20 mars 2003, entre 30°N et 50°N, montrant la dépendance spectrale et l'incertitude de l'extinction à 400 nm et à 500 nm.....	113
70. Série de profils d'extinction du 20 mars 2003, entre 30°N et 50°N, montrant la dépendance spectrale et l'incertitude de l'extinction à 400 nm et à 500 nm.....	114
71. Profil moyen d'extinction du 20 mars 2003, entre 30°N et 50°N.....	115
72. Valeurs moyennes de l'incertitude de l'extinction à 500 nm, dans l'hémisphère nord, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	116
73. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm dans l'hémisphère nord, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2005.....	117
74. Valeurs moyennes de l'incertitude de l'extinction à 500 nm, entre 30°N et 30°S, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	118
75. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm entre 30°N et 30°S, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	119

76. Valeurs moyennes de l'incertitude de l'extinction à 500 nm, dans l'hémisphère sud, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	120
77. Valeurs moyennes d'extinction à 500 nm, dans l'hémisphère sud, d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	121
78. Évolution temporelle de l'extinction à 500 nm, en fonction de la latitude, de 60 à 35 km d'altitude.....	123
79. Évolution temporelle de l'extinction à 500 nm, en fonction de la latitude, de 32 à 20 km d'altitude.....	124
80. Épaisseurs optiques entre 15 et 30 km, 30 et 60 km et 20 et 60 km.....	126
81. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques de 20 à 60 km en 2002.....	127
82. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques de 20 à 60 km en 2003.....	128
83. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques de 20 à 60 km en 2004.....	129
84. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques de 20 à 60 km en 2005.....	130
85. Valeurs mensuelles des épaisseurs optiques de 20 à 60 km en 2006.....	131
86. Contenu global moyen d'aérosols, de 25 km à 34 km d'altitude.....	134
87. Contenu global moyen d'aérosols, de 35 km à 60 km d'altitude.....	135
88. Variation temporelle du CI entre 10 et 50 km, aux latitudes 90°N-70°N, 70°N-50°N, 50°N-30°N et 30°N-10°N, pour la période allant d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	138
89. Variation temporelle du CI entre 10 et 50 km, aux latitudes 10°N-10°S, 10°S-30°S, 30°S-50°S et 50°S-70°S, pour la période allant d'août 2002 à janvier 2005, et de juillet 2005 à juillet 2006.....	139
90. Distributions en taille des aérosols dans la nuit du 19 au 20 juin 2008, vers 5°S, et le 9 avril 2010, vers 67°N.....	142
91. Moyennes zonales saisonnières de l'extinction à 500 nm de 2002 à 2006.....	143
92. Extinctions moyennes pour les mois de janvier des différentes années, périodes correspondantes aux phases est et ouest de la QBO à 30 km.....	145
93. Variation temporelle de l'extinction à 30, 28 et 26 km d'altitude.....	146
94. Cartes des épaisseurs optiques d'aérosols de 30 à 60 km dans l'hémisphère nord, entre 50°N et 70°N, en août, septembre et octobre 2003.....	149
95. Indice de couleur, extinction à 500 nm et concentration de NO <sub>2</sub> depuis mi-août jusque fin 2003, de janvier à mai 2004 et de janvier à mai 2006, entre 90°N et 70°N..	150

Figure A1. Variation temporelle de la concentration d’ozone entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère nord.....	Annexe
Figure A2. Variation temporelle de la concentration d’ozone entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales.....	Annexe
Figure A3. Variation temporelle de la concentration d’ozone entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère sud.....	Annexe
Figure A4. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>2</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère nord.....	Annexe
Figure A5. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>2</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales.....	Annexe
Figure A6. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>2</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère sud.....	Annexe
Figure A7. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>3</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère nord.....	Annexe
Figure A8. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>3</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, aux latitudes tropicales et intertropicales.....	Annexe
Figure A9. Variation temporelle de la concentration de NO <sub>2</sub> entre août 2002 et janvier 2005 et de juillet 2005 à juillet 2006, dans l’hémisphère sud.....	Annexe

---

# Bibliographie

- Baldwin, M. P., L. J. Gray and T. J. Dunkerton (2001), The Quasi-Biennial Oscillation, *Rev. Geophys.*, *39*, 179-229.
- Bates, D. R. and M. Nicolet (1950), Atmospheric hydrogen, *Publ. Astron. Soc. Pac.*, *62*, 106-110.
- Bauman, J. J., P. B. Russell, M. A. Geller and P. Hamill (2003a), A stratospheric aerosol climatology from SAGE II and CLAES measurements: 1. Methodology, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4382, doi:10.1029/2002JD002992.
- Bauman, J. J., P. B. Russell, M. A. Geller and P. Hamill (2003b), A stratospheric aerosol climatology from SAGE II and CLAES measurements: 2. Results and comparisons, 1984-1999, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4383, doi:10.1029/2002JD002993.
- Baumgardner, D., G. Kok and G. Raga (2004), Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, L06117, doi:10.1029/2003GL018883.

- Bekki, S., R. Tourni and J. A. Pyle (1993), Role of sulphur photochemistry in tropical ozone changes after the eruption of Mount Pinatubo, *Nature*, *362*, 331-333.
- Bekki, S. and J. A. Pyle (1994), A two-dimensional modeling study of the volcanic eruption of Mount Pinatubo, *J. Geophys. Res.*, *99*, 18,861-18,869.
- Bekki, S. (1995), Oxidation of volcanic SO<sub>2</sub>: a sink for stratospheric OH and H<sub>2</sub>O, *Geophys. Res. Lett.*, *22*, 913-916.
- Bekki, S. (1997), On the possible role of aircraft-generated soot in the middle latitude ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, *102*, 10,751-10,758.
- Bergstrom, R., P. B. Russell and P. Hignett (2002), Wavelength dependence of the absorption of black carbon particles: predictions and results from the TARFOX experiment and implications for the aerosol single scattering albedo, *J. Atmos. Sci.*, *59*, 567-576.
- Bernath, P. F., C. T. McElroy, M. C. Abrams, C. D. Boone, M. Butler, C. Camy-Peyret, M. Carleer, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, R. Colin, P. DeCola, M. DeMazière, J. R. Drummond, D. Dufour, W. F. J. Evans, H. Fast, D. Fussen, K. Gilbert, D. E. Jennings, E. J. Llewellyn, R. P. Lowe, E. Mahieu, J. C. McConnell, M. McHugh, S. D. McLeod, R. Michaud, C. Midwinter, R. Nassar, F. Nichitieu, C. Nowlan, C. P. Rinsland, Y. J. Rochon, N. Rowlands, K. Semeniuk, P. Simon, R. Skelton, J. J. Sloan, M.-A. Soucy, K. Strong, P. Tremblay, D. Turnbull, K. A. Walker, I. Walkty, D. A. Wardle, V. Wehrle, R. Zander and J. Zou (2005), Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission overview, *Geophys. Res. Lett.*, *32*, L15S01, doi:10.1029/2005GL022386.
- Bertaux, J.-L., A. Hauchecorne, F. Dalaudier, C. Cot, E. Kyrölä, D. Fussen, J. Tamminen, G. W. Leppelmeier, V. Sofieva, S. Hassinen, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Théodore, M. Guirlet, O. Korabiev, P. Snoeij, R. Koopman and R. Fraise (2004), First results on GOMOS/ENVISAT, *Adv. Space Res.*, *33*, 1029-1035.
- Bertaux, J.-L., E. Kyrölä, D. Fussen, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, V. Sofieva, J. Tamminen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, L. Blanot, J. C. Lebrun, K. Pérot, T. Fehr, L. Saavedra and R. Fraise (2010), Global ozone monitoring by occultation of stars: an overview of GOMOS measurements on ENVISAT, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 9917-10076.
- Berthet, G. (2002), Étude de la répartition verticale des composés stratosphériques minoritaires mesurés par l'instrument SALOMON, *thèse*, Université d'Orléans.

- Bingen, C. and D. Fussen (2000), Structure and spectral features of the stratospheric aerosol extinction profiles in the UV-visible range derived from SAGE II data, *J. Geophys. Res.*, *105*, 4767-4776.
- Bingen, C., F. Vanhellemont and D. Fussen (2003), A new regularized inversion method for the retrieval of stratospheric aerosol size distributions applied to 16 years of SAGE II data (1984-2000): method, results and validation, *Ann. Geophys.*, *21*, 797-804.
- Bingen, C., D. Fussen and F. Vanhellemont (2004a), A global climatology of SAGE II data: toward a systematic characterization of the aerosol evolution, *Adv. Space. Res.*, *34*, 1763-1767.
- Bingen, C., D. Fussen and F. Vanhellemont (2004b), A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984-2000: 1. Methodology and climatological observations, *J. Geophys. Res.*, *109*, D06201, doi:10.1029/2003JD003518.
- Bingen, C., D. Fussen and F. Vanhellemont (2004c), A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984-2000: 2. Reference data, *J. Geophys. Res.*, *109*, D06202, doi:10.1029/2003JD003511.
- Bingen, C., D. Fussen and F. Vanhellemont (2006), A review of stratospheric aerosol characterization, *Adv. Space Res.*, *38*, 2433-2445.
- Blake, D. F and K. Kato (1995), Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *100*, 7195-7202.
- Bluth, G. J. S., S. D. Doiron, C. C. Schnetzler, A. J. Krueger and L. S. Walter (1992), Global tracking of the SO<sub>2</sub> clouds from the June, 1991 Mount Pinatubo eruptions, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 151-154.
- Brasseur, G. P., C. Granier and S. Walters (1990), Future changes in stratospheric ozone and the role of heterogeneous chemistry, *Nature*, *348*, 626-628.
- Brasseur, G. P. and S. Solomon (2005), *Aeronomy of the Middle Atmosphere: Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*, Atmospheric and Oceanographic Sciences Library, Third revised and enlarged Edition, Springer, The Netherlands.
- Brewer, A. W. (1949), Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, *75*, 351-363.
- Brogniez, C. and J. Lenoble (1987), Modeling of the stratospheric background aerosols

- from zonally averaged SAGE profiles, *J. Geophys. Res.*, *92*, 3051-3060.
- Brogniez, C. and J. Lenoble (1988), Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinction, in *Aerosols and Climate*, edited by P. V. Hobbs and M. P. McCormick, pp. 305-312, A. Deepak, Hampton.
- Brogniez, C. and J. Lenoble (1991), Analysis of 5 year aerosol data from the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment, *J. Geophys. Res.*, *96*, 15,479-15,497.
- Brogniez, C., J. Lenoble, M. Herman, P. Lecomte and C. Verwaerde (1996), Analysis of two balloon experiments in coincidence with SAGE II in case of large stratospheric aerosol amount: Post-Pinatubo period, *J. Geophys. Res.*, *101*, 1541-1552.
- Brogniez, C., N. Huret, S. Eckermann, E. D. Rivi re, M. Pirre, M. Herman, J.-Y. Balois, C. Verweaerde, N. Larsen and B. Knudsen (2003), Polar stratospheric cloud microphysical properties measured by the MicroRADIBAL instrument on 25 January 2000 above Esrange and modeling interpretation, *J. Geophys. Res.*, *108*, 8332, doi:10.1029/2001JD001017.
- Bucholtz, A. (1995), Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Optics*, *34*, 1227-1230.
- Chapman, S. (1930), A Theory of Upper Atmospheric Ozone, *R. Meteorol. Soc. Mem.*, *3*, 103-125.
- Chu, W., M. McCormick, M. Lenoble, C. Brogniez and P. Pruvost (1989), SAGE II inversion algorithm, *J. Geophys. Res.*, *94*, 8339-8351.
- Chuan, R. L. and D. C. Woods (1984), The appearance of carbon aerosol particles in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *11*, 553-556.
- Crutzen, P. J. (1970), The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, *96*, 320-327.
- Crutzen, P. J. (1976), The possible importance of CSO for the sulfate layer of the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *3*, 73-76.
- Curtius, J., R. Weigel, H.-J. V ssing, H. Wernli, A. Werner, C.-M. Volk, P. Konopka, M. Krebsbach, C. Schiller, A. Roiger, H. Schlager, V. Dreiling and S. Borrmann (2005), Observations of meteoritic material and implications for aerosol nucleation in the winter Arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 3053-3069.



- Czizco, D. J., D. S. Thomson and D. M. Murphy (2001), Ablation, flux, and atmospheric implications of meteors inferred from stratospheric aerosol, *Science*, *291*, 1772-1775.
- Dalaudier, F., V. Kan and A. S. Gurvich (2001), Chromatic refraction with global ozone monitoring by occultation of stars. I. Description and scintillation correction, *Appl. Optics*, *40*, 866-877.
- Delmas, R., G. Mégie, V.-H. Peuch (2005), *Physique et chimie de l'atmosphère*, Collection Échelles, éditions Belin, Paris.
- Deshler, T., M. E. Hervig, D. J. Hofmann, J. M. Rosen and J. B. Liley (2003), Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41°N), using balloon-borne instruments, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4167, doi:10.1029/2002JD002514.
- Deshler, T., R. Anderson-Sprecher, H. Jäger, J. Barnes, D. J. Hofmann, B. Clemesha, D. Simonich, M. Osborn, R. G. Grainger and S. Godin-Beekmann (2006), Trends in the nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971-2004, *J. Geophys. Res.*, *111*, D01201, doi:10.1029/2005JD006089.
- Deshler, T. (2008), A review of global stratospheric aerosol: Measurements, importance, life cycle, and local stratospheric aerosol, *Atmos. Res.*, *90*, 223-232.
- Dobson, G. M. B. (1956), Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere. *Proc. Roy. Soc.*, *236*, 187-196.
- Dodion, J., D. Fussen, F. Vanhellemont, C. Bingen, N. Mateshvili, K. Gilbert, R. Skelton, D. Turnbull, S. D. McLeod, C. D. Boone, K. A. Walker and P. F. Bernath (2008). Aerosols and clouds in the upper troposphere-lower stratosphere region detected by GOMOS and ACE: Intercomparison and analysis of the years 2004 and 2005, *Adv. Space Res.*, *42*, 1730-1742.
- Dowdy, A. J., R. A. Vincent, D. J. Murphy, M. Tsutsumi, D. M. Riggan and M. J. Jarvis (2004), The large-scale dynamics of the mesosphere-lower thermosphere during the Southern Hemisphere stratospheric warming of 2002, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, L14102, doi:10.1029/2004GL020282.
- Dutton, E. G. and J. R. Christy (1992), Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 2313-2316.
- Fanton d'Andon, O., G. Barrot, M. Guirlet, T. Fehr and L. Saavedra (2010), Optical

- extinction by upper tropospheric/stratospheric aerosols and clouds: GOMOS observations for the period 2002-2008, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 11109-11138.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner and J. D. Shanklin (1985), Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub>/ NO<sub>x</sub> interaction, *Nature*, *315*, 207-210.
- Fromm, M., J. Alfred, K. Hoppel, J. Hornstein, R. Bevilacqua, E. Shettle, R. Servranckx, Z. Li and B. Stocks (2000), Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by POAM III, SAGE II, and lidar in 1998, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 1407-1410.
- Fromm, M., R. Bevilacqua, R. Servranckx, J. Rosen, J. P. Thayer, J. Herman and D. Larko (2005), Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998, *J. Geophys. Res.*, *110*, D08205, doi:10.1029/2004JD005350.
- Fromm, M., A. Tupper, D. Rosenfel, R. Servranckx and R. McRae (2006), Violent pyro-convective storm devastates Australia's capital and pollutes the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *33*, L05815, doi:10.1029/2005GL025161.
- Fussen, D., E. Arijs, D. Nevejans, F. Vanhellemont, C. Brogniez and J. Lenoble (1998), Validation of the ORA spatial inversion algorithm with respect to the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II data, *Appl. Optics*, *37*, 3121-3127.
- Fussen, D., F. Vanhellemont and C. Bingen (2001a), Evolution of stratospheric aerosols in the post-Pinatubo period measured by the occultation radiometer experiment ORA, *Atmos. Environ.*, *35*, 5067-5078.
- Fussen, D., F. Vanhellemont and C. Bingen (2001b), Evidence of transport, sedimentation and coagulation mechanisms in the relaxation of post-volcanic stratospheric aerosols, *Ann. Geophys.*, *19*, 1157-1162.
- Fussen, D., F. Vanhellemont, C. Bingen, B. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, S. Hassinen, A. Seppälä, P. T. Verronen, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Theodore, M. Guirlet, J.-B. Renard, R. Fraisse, P. Snoeij, R. Koopman and L. Saavedra (2005), Autoregressive smoothing of GOMOS transmittances, *Adv. Space Res.*, *36*, 899-905.
- GIEC, 2007: *Changements climatiques 2007 -Les éléments scientifiques. Contribution du Groupe de Travail I au Quatrième apport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat*. Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor and H. L. Miller (Eds.), Cambridge

- University Press, Cambridge, Royaume Uni et New York, NY, États-Unis.
- GOMOS Product Handbook, European Space Agency, Issue 3.0, 31 May 2007:  
[http://earth.esa.int/pub/ESA\\_DOC/ENVISAT/GOMOS/gomos.ProductHandbook.3.0.pdf](http://earth.esa.int/pub/ESA_DOC/ENVISAT/GOMOS/gomos.ProductHandbook.3.0.pdf)
- GOMOS ESL, Algorithm Theoretical Basis Document, version 2.0 (2007):  
<http://envisat.esa.int/instruments/gomos/atbd/>
- Gordley, L. L., M. Hervig, C. Fish, J. M. Russell III, S. Bailey, J. Cook, S. Hansen, A. Shumway, G. Paxton, L. Deaver, T. Marshall, J. Burton, B. Magill, C. Brown, E. Thompson and J. Kemp (2009), The Solar Occultation For Ice Experiment (SOFIE), *J. Atmos. Solar-Terr. Phys.*, *71*, 300-315.
- Grant, W. B., E. V. Browell, C. S. Long, L. L. Strowe, R. G. Grainger and A. Lambert (1996), Use of volcanic aerosols to study the tropical stratospheric reservoir, *J. Geophys. Res.*, *101*, 3973-3988.
- Gruner, P., H. Kleinert (1927), Die dammerungerscheinen, *Probl. Kosm. Phys.*, *10*, 1-113.
- Hamill, P., E. J. Jensen, P. B. Russell and J. J. Bauman (1997), The life cycle of stratospheric aerosol particles, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, *78*, 1395-1410.
- Hauchecorne, A., J.-L. Bertaux, F. Dalaudier, C. Cot, J.-C. Lebrun, S. Bekki, M. Marchand, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, D. Fussen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Théodore, M. Guirlet, P. Snoeij, R. Koopman, L. Saavedra de Miguel, R. Fraisse and J.-B. Renard (2005), First simultaneous global measurements of nighttime stratospheric NO<sub>2</sub> and NO<sub>3</sub> observed by Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars (GOMOS)/ENVISAT in 2003, *J. Geophys. Res.*, *110*, D18301, doi:10.1029/2004JD005711.
- Hauchecorne, A., J.-L. Bertaux and R. Lallement (2006), Impact of solar activity on stratospheric ozone and NO<sub>2</sub> observed by GOMOS/ENVISAT, *Space Sci. Rev.*, *125*, 393-402.
- Hauchecorne, A., J.-L. Bertaux, F. Dalaudier, J. M. Russell III, M. G. Mlynczak, E. Kyrölä and D. Fussen (2007), Large increase of NO<sub>2</sub> in the north polar mesosphere in January-February 2004: Evidence of a dynamical origin from GOMOS/ENVISAT and SABER/TIMED data, *Geophys. Res. Lett.*, *34*, L03810, doi:10.1029/2006GL027628.
- Hauchecorne, A., J.-L. Bertaux, F. Dalaudier, P. Keckhut, P. Lemennais, S. Bekki, M. Marchand, J.-C. Lebrun, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, D. Fussen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, L. Blanot, T. Fehr and L. Saavedra de

- Miguel (2010), Response of tropical stratospheric O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and NO<sub>3</sub> to equatorial Quasi-Biennial Oscillation and to temperature as seen from GOMOS/ENVISAT, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 9153-9171.
- Hays, P. B. and R. G. Roble (1968), Stellar spectra and atmospheric composition, *J. Atmos. Sci.*, *25*, 1141-1153.
- Haywood, J and O. Boucher (2000), Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review, *Rev. Geophys.*, *38*, 513-543.
- Hervig, M. E., J. M. Russell III, L. L. Gordley, J. H. Park, S. Roland Drayson and T. Deshler (1996), Validation of aerosol measurements from the HALogen Occultation Experiment, *J. Geophys. Res.*, *101*, 10,267-10,275.
- Hervig, M. E., L. L. Gordley, L. E. Deaver, D. E. Siskind, M. H. Stevens, J. M. Russell III, S. M. Bailey, L. Megner and C. G. Bardeen (2009), First satellite observations of meteoric smoke in the middle atmosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *36*, L18805, doi:10.1029/2009GL039737.
- Hitchman, M. H., M. McKay and C. R. Trepte (1994), A climatology of stratospheric aerosol, *J. Geophys. Res.*, *99*, 20,689-20,700.
- Hofmann, D. J. and S. Solomon (1989), Ozone destruction through heterogeneous chemistry following the eruption of El Chichón, *J. Geophys. Res.*, *94*, 5029-5041.
- Hoffmann, P., W. Singer, D. Keuer, W. K. Hocking, M. Kunze and Y. Murayama (2007), Latitudinal and longitudinal variability of mesospheric winds and temperatures during stratospheric warming events, *J. Atmos. Sol-Terr. Phys.*, *69*, 2355-2366.
- Hofmann, D., J. Barnes, M. O'Neill, M. Trudeau and R. Neely (2009), Increase in background stratospheric aerosol observed with lidar at Mauna Loa Observatory and Boulder, Colorado, *Geophys. Res. Lett.*, *36*, 11111-11122.
- Holton, J. R and H.-C. Tan (1980), The influence of the equatorial quasi-biennial oscillation on the global circulation at 50 mb, *J. Atmos. Sci.*, *37*, 2200-2208.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood and L. Pfister (1995), Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, *33*, 403-439.
- Hunten, D. M., R. P. Turco and O. B. Toon (1980), Smoke and dust particles of meteoric origin in the mesosphere and stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, *37*, 1342-1357.
- Immler, F., D. Engelbart and O. Schrems (2005), Fluorescence from atmospheric aerosol

- detected by a lidar indicates biogenic particles in the lowermost stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 345-355.
- IPCC, 2007: *Climate Change 2007 -The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment. Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor and H. L. Miller (Eds.), Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 996 pp.
- Jost, H.-J., K. Drdla, A. Stohl, L. Pfister, M. Loewenstein, J. P. Lopez, P. K. Hudson, D. M. Murphy, D. J. Cizco, M. Fromm, T. P. Bui, J. Dean-Day, C. Gerbig, M. J. Mahoney, E. C. Richard, N. Spichtinger, J. V. Pittman, E. M. Weinstock, J. C. Wilson and I. Xueref (2004), In situ observations of mid-latitude forest fire plumes deep in the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L11101, doi:10.1029/2003GL019253.
- Junge, C. E and J. E. Manson (1961), Stratospheric aerosol studies, *J. Geophys. Res.*, **66**, 2163-2182
- Keckhut, P., A. Hauchecorne, S. Bekki, A. Colette, C. David and J. Jumelet (2005), Indications of thin cirrus clouds in the stratosphere at midlatitudes, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 3407-3414.
- Keckhut, P., A. Hauchecorne, L. Blanot, K. Hocke, S. Godin-Beekmann, J.-L. Bertaux, G. Barrot, E. Kyrölä, A. Van Gijssel and A. Pazmino (2010), Ozone monitoring with the GOMOS-ENVISAT experiment version 5, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **10**, 14713-14735.
- Kiehl, J. T. and K. E. Trenberth (1997), Earth's Annual Global Mean Energy Budget, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, **78**, 197-208.
- Kiessling, J (1988), *Die Dämmerungscheinungen im Jahre 1883 und ihre physicalische Erklärung*, L. Voss, Hamburg und Leipzig.
- Klekociuk, A. R., P. G. Brown, D. W. Pack, D. O. ReVelle, W. N. Edwards, R. E. Spalding, E. Tagliaferri, B. B. Yoo and J. Zagari (2005), Meteoritic dust from the atmospheric disintegration of a large meteorid, *Nature*, **436**, 1132-1135.
- Kyrölä, E., J. Tamminen, G. Leppelmeier, V. Sofieva, S. Hassinen, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, C. Cot, O. Korablev, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Théodore, M. Guirlet, F. Etanchaud, P. Snoeij, R. Koopman,

- L. Saavedra, R. Fraisse, D. Fussen and F. Vanhellemont (2004), GOMOS on ENVISAT: an overview, *Adv. Space Res.*, *33*, 1020-1028.
- Kyrölä, E., J. Tamminen, V. Sofieva, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, D. Fussen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, M. Guirlet, A. Mangin, L. Blanot, T. Fehr, L. Saavedra de Miguel and R. Fraisse (2010a), Retrieval of atmospheric parameters from GOMOS data, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 10145-10217.
- Kyrölä, E., J. Tamminen, V. Sofieva, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, D. Fussen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, M. Guirlet, T. Fehr and L. Saavedra de Miguel (2010b), GOMOS O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and NO<sub>3</sub> observations in 2002-2008, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 2169-2220.
- Labitzke, K. and M. P. McCormick (1992), Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 207-210.
- Lambert, A., R. G. Grainger, C. D. Rodgers and F. W. Taylor (1997), Global evolution of the Mt. Pinatubo volcanic aerosols observed by the infrared instruments CLAES and ISAMS on the Upper Atmosphere Research Satellite, *J. Geophys. Res.*, *102*, 1495-1512.
- Lenoble, J., P. Pruvost and C. Brogniez (1984), SAGE satellite observations of stratospheric aerosols from Mount St. Helens eruption: A two-wavelength analysis, *J. Geophys. Res.*, *89*, 11,666-11,676.
- Lohmann, U. and J. Feichter (2005), Global indirect aerosol effects: A review, *Atmos. Chem. Physics*, *5*, 715-737.
- López-Puertas, M., B. Funke, T. Von Clarmann, H. Fisher and G. P. Stiller (2006), The stratospheric and mesospheric NO<sub>y</sub> in the 2002-2004 polar winters as measured by MIPAS/ENVISAT, *Space Sci. Rev.*, *196*, 405-415.
- Lucke, R. L., D. R. Korwan, R. M. Bevilacqua, J. S. Horstein, E. P. Shettle, D. T. Chen, M. Daehler, J. D. Lumpe, M. D. Fromm, D. Debrestian, B. Neff, M. Squire, G. König-Langlo and J. Davies (1999), The Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) III instrument and early validation results, *J. Geophys. Res.*, *104*, 18,785-18,799.
- Manney, G. L., K. Krüger, J. L. Sabutis, S. A. Sena and S. Pawson (2005), The remarkable 2003-2004 winter and other recent warm winters in the Arctic stratosphere since the late

- 1990s, *J. Geophys. Res.*, *110*, D04107, doi:10.1029/2004JD005367.
- Manney, G. L., W. H. Daffer, K. B. Strawbridge, K. A. Walter, C. D. Boone, P. F. Bernath, T. Kerzenmacher, M. J. Schwartz, K. Strong, R. J. Sica, K. Krüger, H. C. Pumphrey, A. Lambert, M. L. Santee, N. J. Livesey, E. E. Remsberg, M. G. Mlynczak and J. R. Russell III (2008), The high Arctic in extreme winters: vortex, temperature, and MLS and ACE-FTS trace gas evolution, *Atmos. Chem. Phys.*, *8*, 505-522.
- McCormick, M. P., P. Hamill, T. J. Pepin, W. P. Chu, T. J. Swissler and L. R. McMaster (1979), Satellite studies of the stratospheric aerosol, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, *60*, 1038-1046.
- McCormick, M. P., H. M. Steele, P. Hamill and Chu, W. P. (1982), Polar stratospheric clouds sighted by SAM II, *J. Atmos. Sci.*, *39*, 1387-1397.
- McCormick, M. P. and C. R. Trepte (1986), SAM II measurements of antartic PSC's and aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *13*, 1276-1279.
- McCormick, M. P. and R. E. Veiga (1992), SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 155-158.
- McCormick, M. P., L. W. Thomason and C. R. Trepte (1995), Atmospheric effects of the Mt Pinatubo eruption, *Nature*, *373*, 399-404.
- Molina, M. J. and F. S. Rowland (1974), Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: Chlorine atom catalyzed destruction of ozone, *Nature*, *249*, 810-812.
- Mossop, S. C. (1963), Stratospheric particles at 20 km, *Nature*, *199*, 325-326.
- Murphy, D. M., D. S. Thomson and M. J. Mahoney (1998), In situ measurements of organics, meteoritic material, mercury, and other elements in aerosols at 5 to 19 kilometers, *Science*, *282*, 1664-1669.
- Nedelec, P., V. Thouret, J. Brioude, B. Sauvage, J.-P. Cammas and A. Stohl (2005), Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data, *Geophys. Res. Lett.*, *32*, L14807, doi:10.1029/2005GL023141.
- Niwano, M., S. Hayashida, H. Akiyoshi and M. Takahashi (2009), Seasonal cycles of Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II near-background aerosol in the lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *114*, D14306, doi:10.1029/2008JD009842.
- O'Neill, N. T., A. Ignatov, B. N. Holben and T. F. Eck (2000), The lognormal distribution

- as a reference for reporting aerosol optical depth statistics; Empirical tests using multi-year, multi-site AERONET sunphotometer data, *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 3333-3336.
- Orsolini, Y., J. J. Urban, D. P. Murtagh, S. Lossow and V. Limpasuvan (2010), Descent from the polar mesosphere and anomalously high stratopause observed in 8 years of water vapour and temperature satellite observations by the Odin Sub-Millimeter Radiometer, *J. Geophys. Res.*, *115*, D12305, doi:10.1029/2009JD013501.
- Ovalez, J. and H. Ovalez (1995), Water vapour and aerosol measurements during SESAME, and the observation of low water vapour content layers, in *Air Pollution Report N°56, Polar Stratospheric Ozone, Proceedings of the third European Workshop*, CEC publication, Bruxelles, 205-208.
- Penner, J. E, R. E. Dickinson and C. A. O'Neill (1992), Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget, *Science*, *256*, 1432-1434.
- Platt, U. (1994), *Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS) in Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*, M. W. Sigrid (Ed.), Chemical Analysis Series, pp. 27-84, John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Platt, U. and J. Stutz (2008), *Differential Optical Absorption Spectroscopy: Principles and Applications*, Physics of Earth and Space Environments, Springer-Berlag, Berlin.
- Poole, L. R. and M. C. Pitts (1994), Polar stratospheric cloud climatology based on Stratospheric Aerosol Measurement II observations from 1978 to 1989, *J. Geophys. Res.*, *99*, 13083-13089.
- Pueschel, R. F., D. F. Blake, K. G. Snetsinger, A. D. A. Hansen, S. Verma and K. Kato (1992), Black carbon (soot) aerosol in the lower stratosphere and upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 1659-1662.
- Pueschel, R. F., K. A. Boering, S. Verma, S. D. Howard, G. V. Ferry, J. Goodman, D. A. Allen and P. Hamill (1997), Soot aerosol in the lower stratosphere: Pole-to-pole variability and contributions by aircraft, *J. Geophys. Res.*, *102*, 13,113-13,118.
- Pueschel, R. F., S. Verma, H. Rohatschek, G. V. Ferry, N. Boiadjeva, S. D. Howard and A. W. Strawa (2000), Vertical transport of anthropogenic soot aerosol into the middle atmosphere, *J. Geophys. Res.*, *105*, 3727-3736.
- Randall, C. E., R. M. Bevilacqua, J. D. Lumpe and K. W. Hoppel (2001), Validation of POAM III aerosols: Comparison to SAGE II and HALOE, *J. Geophys. Res.*, *106*, 27,535-27,536.



- Randall, C. E., V. L. Harvey, G. L. Manney, Y. Orsolini, M. Codrescu, C. Sioris, S. Brohede, C. S. Haley, L. L. Gordley, J. M. Zawodny and J. M. Russell III (2005), Stratospheric effects of energetic particle precipitation in 2003-2004, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L0582, doi:10.1029/2004GL022003.
- Ratier, G., G. Levriani, A. Popescu, T. Paulsen, C. Readings and J. Langen (1999), GOMOS: Envisat's contribution to measuring long-term trends in ozone and other trace gases, *ESA Bulletin*, **97**, 20-27.
- Renard, J.-B., M. Pirre, C. Robert, G. Moreau, D. Huguenin and J. M. Russell III (1996), Nocturnal vertical distribution of stratospheric O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and NO<sub>3</sub> from balloon measurements, *J. Geophys. Res.*, **101**, 28,793-28,804.
- Renard, J.-B., M. Chartier, C. Robert, G. Chalumeau, G. Berthet, M. Pirre, J.-P. Pommereau and F. Goutail (2000), SALOMON: a new, light balloonborne UV-visible spectrometer for nighttime observations of stratospheric trace-gas species, *App. Optics*, **39**, 386-392.
- Renard, J.-B., E. Hadamcik, C. Brogniez, G. Berthet, J.-C. Worms, M. Chartier, M. Pirre, J. Ovarlez and H. Ovarlez (2001a), Ultraviolet-visible bulk optical properties of randomly distributed soot, *Appl. Optics*, **40**, 6575-6580.
- Renard, J.-B., F. Dalaudier, A. Hauchecorne, C. Robert, T. Lemaire, M. Pirre and J.-L. Bertaux (2001b), Measurement of stratospheric chromatic scintillation with the AMON-RA balloonborne spectrometer, *Appl. Optics*, **40**, 4254-4260.
- Renard, J.-B., G. Berthet, C. Robert, M. Chartier, M. Pirre, C. Brogniez, M. Herman, C. Verwaerde, J.-Y. Balois, J. Ovarlez, H. Ovarlez, J. Crespin and T. Deshler (2002), Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains: 2. Comparison of extinction, reflectance, polarization and counting measurements, *Appl. Optics*, **41**, 7540-7549.
- Renard, J.-B., G. Berthet, M. Chartier and C. Robert (2003a), Validation of GOMOS products using SALOMON algorithms and data, in *Proceedings of Envisat Validation Workshop (Frascati, Italy, 9-12 December 2002)*, Eur. Space Agency Spec. Publ., ESA SP-531.
- Renard, J.-B., M. Chartier, G. Berthet, C. Robert, T. Lemaire, F. Pepe, M. George and M. Pirre (2003b), Validation of GOMOS vertical profiles using the stratospheric balloon-borne AMON and SALOMON UV-visible spectrometers, in *Proceedings of the 16<sup>th</sup> ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related*

*Research (St. Gallen, Switzerland, 2-5 June 2003), ESA SP-530.*

- Renard, J.-B., G. Berthet, A. Bracher, V. Catoire, M. Chartier, B. Gaubicher, F. Goutail, N. Huret-Brun, H. Oelhaf, J. Ovalez, J.-P. Pommereau, C. Robert and G. Wetzel (2004), Validation of GOMOS vertical profiles using balloon-borne instruments and satellite data, in *Proceedings of the Second Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of ENVISAT (Frascati, Italy, 3-7 May 2004), Eur. Space Agency Spec. Publ., ESA SP-562.*
- Renard, J.-B., J. Ovalez, G. Berthet, D. Fussen, F. Vanhellemont, C. Brogniez, E. Hadamcik, M. Chartier and H. Ovalez (2005), Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. III. Presence of aerosols in the middle stratosphere, *Appl. Optics*, **44**, 4086-4095.
- Renard, J.-B., G. Berthet, C. Brogniez, V. Catoire, D. Fussen, F. Goutail, H. Oelhaf, J.-P. Pommereau, H. K. Roscoe, G. Wetzel, M. Chartier, C. Robert, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, F. Auriol, P. François, B. Gaubicher and P. Wursteisen (2008a), Validation of GOMOS-Envisat vertical profiles of O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, and aerosol extinction using balloon-borne instruments and analysis of the retrievals, *J. Geophys. Res.*, **113**, A02302, doi:10.1029/2007JA012345.
- Renard J.-B., C. Brogniez, G. Berthet, Q. Bourgeois, B. Gaubicher, M. Chartier, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, F. Auriol, P. Francois, D. Daugeron and C. Engrand (2008b), Vertical distribution of the different types of aerosols in the stratosphere: Detection of solid particles and analysis of their spatial variability, *J. Geophys. Res.*, **113**, D21303, doi:10.1029/2008JD010150.
- Renard, J.-B., G. Berthet, V. Salazar, V. Catoire, M. Tagger, B. Gaubicher and C. Robert (2010), In situ detection of aerosol layers in the middle stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L20803, doi:10.1029/2010GL044307.
- Renard, J.-B., V. Salazar and G. Berthet (2010), Aerosols in the middle and upper stratosphere detected by GOMOS-Envisat: 1. Retrieval algorithm, *J. Geophys. Res.*, in press.
- Ricaud, P., F. Lefèvre, G. Berthet, D. Murtagh, E. J. Llewellyn, G. Mégie, E. Kyrölä, G. W. Leppelmeier, H. Auvinen, C. Boone, S. Brohede, D. A. Degenstein, J. de La Noë, E. Dupuy, L. El Amraoui, P. Eriksson, W. F. J. Evans, U. Frisk, R. L. Gattinger, F. Girod, C. S. Haley, S. Hassinen, A. Hauchecorne, C. Jimenez,

- E. Kyrö, N. Latié, E. Le Flochmoën, N. D. Lloyd, J. C. McConnell, I. C. McDade, L. Nordh, M. Olberg, A. Pazmino, S. V. Petelina, A. Sandqvist, A. Seppälä, C. E. Sioris, B. H. Solheim, J. Stegman, K. Strong, P. Taalas, J. Urban, C. von Savigny, F. von Scheele and G. Witt (2005), Polar vortex evolution during the 2002 Antarctic major warming as observed by the Odin satellite, *J. Geophys. Res.*, *110*, D05302, doi:10.1029/2004JD005018.
- Rivière, E. (2001), Modélisation physico-chimique de la stratosphère arctique: étude des nuages stratosphériques polaires et des interactions entre composés halogénés et composés azotés, *thèse*, Université d'Orléans.
- Robert, C. (1992), Réalisation d'un spectromètre stellaire multi-canal embarquable sous ballon stratosphérique, *thèse*, Université d'Orléans.
- Robock, A. (2000), Volcanic eruptions and climate, *Rev. Geophys.*, *38*, 191-219.
- Rohatschek, H (1996), Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis, *J. Aerosol. Sci.*, *27*, 467-475.
- Rosen, J. M. (1971), The boiling point of stratospheric aerosol, *J. Appl. Meteorol.*, *10*, 1044-1046.
- Russell, P. B., J. M. Livingston, R. F. Pueschel, J. J. Bauman, J. B. Pollack, S. L. Brooks, P. Hamill, L. W. Thomason, L. L. Stowe, T. Deshler, E. G. Dutton and R. W. Bergtrom (1996) Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, *101*, 18, 745-18, 763.
- Scherhag, R. (1960), Stratospheric temperature changes and the associated changes in pressure distribution, *J. Meteorol.*, *17*, 572-585.
- Schreiner, J., C. Voigt, C. Weisser, A. Kohlmann, K. Mauersberger, T. Deshler, C. Kröger, J. Rosen, N. Kjome, N. Larsen, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, J. Ovarlez, H. Ovarlez and A. Dörnbrack (2003), Chemical, microphysical, and optical properties of polar stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, *108*, 8313, doi:10.1029/2001JD000825.
- Seppälä, A., P. T. Verronen, E. Kyrölä, S. Hassinen, L. Backman, A. Hauchecorne, J.-L. Bertaux and D. Fussen (2004), Solar proton events of October-November 2003: Ozone depletion in the Northern Hemisphere polar winter as seen by GOMOS/ Envisat, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, L19107, doi:10.1029/2004GL021042.
- Siebert, J., C. Timmis, G. Vaughan and K. H. Fricke (2000), A strange cloud in the Arctic summer stratosphere 1998 above Esrange (68°N), Sweden, *Ann. Geophys.*, *18*, 505-509.

- Sofieva, V. F., V. Kan, F. Dalaudier, E. Kyrölä, J. Tamminen, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, D. Fussen and F. Vanhellemont (2009), Influence of scintillation on GOMOS ozone retrievals, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *9*, 12615-12643.
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland and D. J. Wuebbles (1986), On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, *321*, 755-758.
- SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (2006), Thomason, L. W. and T. Peter, WCRP-124, WMO/TD N°1295, SPARC Report No. 4.
- Stevermer, A. J., I. V. Petropavlovskikh, J. M. Rosen, J. J. DeLuisi (2000), Development of a global stratospheric aerosol climatology: optical properties and applications for UV, *J. Geophys. Res.*, *105*, 22,763-22,776.
- Strawa, A. W., K. Drdla, G. V. Ferry, S. Verna, R. F. Pueschel, M. Yasuda, R. J. Salawitch, R. S. Gao, S. D. Howard, P. T. Bui, M. Loewenstein, J. W. Elkins, K. K. Perkins and R. Cohen (1999), Carbonaceous aerosol (Soot) measured in the lower stratosphere and its role in stratospheric photochemistry, *J. Geophys. Res.*, *104*, 26,753-26,766.
- Tamminen, J., E. Kyrölä, V. F. Sofieva, M. Laine, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, D. Fussen, F. Vanhellemont, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, M. Guirlet, L. Blanot, T. Fehr, L. Saavedra de Miguel and R. Fraisse (2010), GOMOS data characterization and error estimation, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 6755-6796.
- Tétard, C. (2008), Analyse des mesures de l'expérience satellitaire SAGE III: algorithme d'inversion et validation des résultats. Comparaison des produits des instruments de la mission spatiale ACE avec des mesures corrélatives à distance et in situ, *Thèse*, Université de Lille I.
- Tétard, C., D. Fussen, C. Bingen, N. Capouille, E. Dekemper, N. Loodts, N. Mateshvili, F. Vanhellemont, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, J.-L. Bertaux, O. Fanton d'Anton, G. Barrot, M. Guirlet, T. Fehr and L. Saavedra (2009), Simultaneous measurements of OCIO, NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> in the Arctic polar vortex by the GOMOS instrument, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 7857-7866.
- Thomason, L. W., G. S. Kent, C. R. Trepte and L. R. Poole (1997a), A comparison of the stratospheric aerosol background periods of 1979 and 1989-1991, *J. Geophys. Res.*, *102*, 3611-3616.

- Thomason, L. W., L. R. Poole and T. Deshler (1997b), A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II measurements: 1984-1994, *J. Geophys. Res.*, *102*, 8967-8976.
- Thomason, L. W. and G. Taha (2003), SAGE III aerosol extinction measurements: Initial results, *Geophys. Res. Lett.*, *30*, 1631, doi:10.1029/2003GL017317.
- Thomason, L. W., S. P. Burton, B.-P. Luo and T. Peter (2008), SAGE II measurements of stratospheric aerosol properties at non-volcanic levels, *Atmos. Chem. Phys.*, *8*, 983-995.
- Toon, O. B. and R. P. Turco (1991), Polar Stratospheric Clouds and Ozone Depletion, *Scientific American*, 68-74.
- Trepte, C. R. and M. H. Hitchman (1992), Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data, *Nature* (355), 626-628.
- Trepte, C.R., L. W. Thomason and G. S. Kent (1994), Banded structures in stratospheric aerosol distributions, *Geophys. Res. Lett.*, *22*, 2397-2400.
- Turco, R. P., O. B. Toon, P. Hamill and R. C. Whitten (1981), Effects of meteoric debris on stratospheric aerosols and gases, *J. Geophys. Res.*, *86*, 1113-1128.
- Turco, R. P., R. C. Whitten and O. B. Toon (1982), Stratospheric aerosols: Observation and Theory, *Rev. Geophys. Space Phys.*, *20*, 233-279.
- Vanhellemont, F., D. Fussen, C. Bingen, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, S. Hassinen, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Theodore, M. Guirlet, J.-B. Renard, R. Fraisse, P. Snoeij, R. Koopman and L. Saavedra (2005a), A first comparison of GOMOS aerosol extinction retrievals with other measurements, *Adv. Space Res.*, *36*, 894-898.
- Vanhellemont, F., D. Fussen, C. Bingen, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, S. Hassinen, P. Verronen, A. Seppälä, J.-L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Theodore, M. Guirlet, J.-B. Renard, R. Fraisse, P. Snoeij, R. Koopman and L. Saavedra (2005b), A 2003 stratospheric aerosol extinction and PSC climatology from GOMOS measurements on ENVISAT, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 2413-2417.
- Vanhellemont, F., D. Fussen, J. Dodion, C. Bingen and N. Mateshvili (2006), Choosing a suitable analytical model for aerosol extinction spectra in the retrieval of UV/visible satellite occultation measurements, *J. Geophys. Res.*, *111*, D23203,

doi:10.1029/2005JD006941.

- Vanhellemont, F., D. Fussen, N. Mateshvili, C. Tétard, C. Bingen, E. Dekemper, N. Loodts, E. Kyrölä, V. Sofieva, J. Tamminen, A. Hauchecorne, J. L. Bertaux, F. Dalaudier, L. Blanot, O. Fanton d'Andon, G. Barrot, M. Guirlet, T. Fehr and L. Saavedra (2010), Optical extinction by upper tropospheric/ stratospheric aerosols and clouds: GOMOS observations for the period 2002-2008, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *10*, 11109-11138.
- Vernier, J. P., J. P. Pommereau, A. Garnier, J. Pelon, N. Larsen, J. Nielsen, T. Christensen, F. Cairo, L. W. Thomason, T. Leblanc and I. S. McDermid (2009), Tropical stratospheric aerosol layer from CALIPSO lidar observations, *J. Geophys. Res.*, *114*, D00H10, doi:10.1029/2009JD011946.
- Voigt, S., J. Orphal, K. Bogumil and J. P. Burrows (2001), The temperature dependence (203-293) of the absorption cross-sections of O<sub>3</sub> in the 230-850 nm region measured by Fourier-Transform Spectroscopy, *J. Photoch. Photob. A.*, *143*, 1-9.
- Voltz, F. E. (1964), Twilight phenomena caused by the eruption of Mt Agung volcano, *Science*, *144*, 1121-1122.
- Wang, P.-H., P. Minnis, M. P. McCormick, G. S. Kent and K. M. Skeens (1996), A 6-year climatology of cloud occurrence frequency from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II observations (1985-1990), *J. Geophys. Res.*, *101*, 29,407-29,429.
- Wang, P.-H., D. Rind, C. R. Trepte, G. S. Kent, G. K. Yue and K. Skeens (1998), An empirical model study of the tropospheric meridional circulation based on SAGE II observations, *J. Geophys. Res.*, *103*, 13,801-13,818.
- Watts, S. F. (2000), The mass budgets of carbonyl sulfide, dimethyl sulfide, carbon disulfide and hydrogen sulfide, *Atmos. Environ.*, *34*, 761-779.
- Weisenstein, D., K., G. K. Yue, M. K. W. Ko, N.-D. Sze, J. M. Rodriguez and C. J. Scott (1997), A two-dimensional model of sulfur species and aerosols, *J. Geophys. Res.*, *102*, 13,019-13,035.
- Weisenstein, D and S. Bekki (2006), Modelling of stratospheric aerosols, Chapter 6 of the SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties, edited by: Thomason, L. W. and T. Peter, WCRP-124, WMO/TD-No. 1295, SPARC Report No. 4.
- Woods, T. N., F. G. Eparvier, S. M. Bailey, P. C. Chamberlin, J. Lean, G. J. Rottman, S. C. Solomon, W. K. Tobiska and D. L. Woodraska (2005), The Solar EUV

- Experiment (SEE): mission overview and first results, *J. Geophys. Res.*, *110*, A01312, doi:10.1029/2004JA010765.
- Yee, J.-H., R. J. Verback Jr., R. DeMajistre, F. Morgan, J. F. Carbary, G. J. Romick, D. Morrison, S. A. Lloyd, P. L. DeCola, L. J. Paxton, D. E. Anderson, C. K. Kumar and C.-I. Meng (2002), Atmospheric remote sensing using a combined extinctive and refractive stellar occultation technique. 1. Overview and proof-of-concept observations, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4213, doi:10.1029/2001JD000794.
- Yue, G. K., L. R. Poole, P.-H. Wang and E. W. Chiou (1994), Stratospheric aerosol acidity, density, and refractive index deduced from SAGE II and NMC temperature data, *J. Geophys. Res.*, *99*, 3727-3738.
- Zhao, J., O. B. Toon and R. P. Turco (1995), Origin of condensation nuclei in the springtime polar stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *100*, 5215-5227.







**Étude des propriétés physiques des aérosols de la moyenne et haute atmosphère à partir d'une nouvelle analyse des observations de GOMOS-ENVISAT pour la période 2002-2006**

**Résumé :**

L'étude des aérosols de la stratosphère est primordiale pour modéliser précisément le bilan radiatif terrestre, et pour évaluer l'influence des particules sur le cycle de destruction de l'ozone. Depuis la découverte de la couche de Junge, ce domaine de recherche connaît différents décors, du plus important contenu en aérosols du dernier siècle après l'éruption du Mont Pinatubo en 1991, à un rétablissement vers les faibles niveaux atteints dans les années 2000, qui permet l'étude des particules autres que celles d'origine volcanique. Cependant, à ce jour, le degré de connaissance est faible quant à la distribution spatiale et verticale de ces aérosols dans la moyenne et haute stratosphère. Leur détection présente plusieurs difficultés: les particules ont une grande variété d'origines, compositions, tailles et formes, et leurs faibles épaisseurs optiques rendent indispensables des résultats précis.

Un algorithme d'inversion développé au LPC2E a été adapté à l'analyse des données de niveau 1b de l'instrument GOMOS à bord d'ENVISAT, qui emploie la technique d'occultation stellaire, et fournit une bonne (mais irrégulière) couverture géographique et temporelle des mesures; un critère de sélection est d'ailleurs nécessaire du fait de l'utilisation de sources lumineuses de propriétés différentes. La méthode mise au point est validée pour l'étude de l'extinction induite par les aérosols; une climatologie globale est alors établie pour la période allant d'août 2002 à juillet 2006, et indique la présence permanente de particules dans l'ensemble du globe, jusqu'à environ 45 km d'altitude. La variabilité temporelle de l'extinction montre une augmentation progressive du contenu moyen depuis 2002 aux latitudes tropicales dans la basse stratosphère, et a permis d'évaluer l'effet de l'oscillation quasi-biennale et d'étudier d'autres variations saisonnières. La dépendance spectrale permet de déduire certaines spécificités concernant la taille et la nature des aérosols, majoritairement des particules sulfatées, mais également des suies en provenance de la troposphère et des particules d'origine interplanétaire.

**Mots clés:** aérosols, GOMOS, stratosphère, inversion, extinction, climatologie.

**Study of the physical properties of aerosols in the middle and high atmosphere from a new analysis of GOMOS-ENVISAT observations for the 2002-2006 period**

**Summary :**

The study of stratospheric aerosols is crucial for modeling precisely the earth's radiative budget and because of their influence on ozone depletion. Since the discovery of Junge layer, this area of research has been through various situations: from the greatest volcanic upload of last century after Mount Pinatubo eruption in 1991, and slowly recovering to background levels reached in the 2000s, which allow the study of other than volcanic particles. However, the vertical and spatial distribution of these aerosols in the middle and high stratosphere is still poorly documented and not yet totally understood. Their detection presents many difficulties: the particles have a great variety of origins, compositions, shapes and sizes, and their low optical thicknesses make accurate results necessary.

An inversion algorithm developed in the LPC2E has been adapted to the analysis of level 1b data from GOMOS instrument onboard ENVISAT. The star occultation technique leads to a good (but irregular) spatial and temporal sampling, and a data selection criteria allows the analysis of accurate results, which validation is led for the study of aerosol extinction. A global climatology is then established for the August 2002 to July 2006 period, and shows the permanent presence of aerosol particles around the globe, up to 45 km altitude. The temporal variability shows a progressive enhancement of the mean content from 2002 in the tropics, and was useful to study the influence of the quasi-biennial oscillation in the middle stratosphere, as well as some seasonal features. The study of the spectral dependence informs about the size and nature of the particles, mainly sulfate aerosols, but also soot coming from the troposphere and aerosols of extra-terrestrial origin.

**Keywords:** aerosols, GOMOS, stratosphere, inversion, extinction, climatology.